

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2004 年 10 月 14 日 (14.10.2004)

PCT

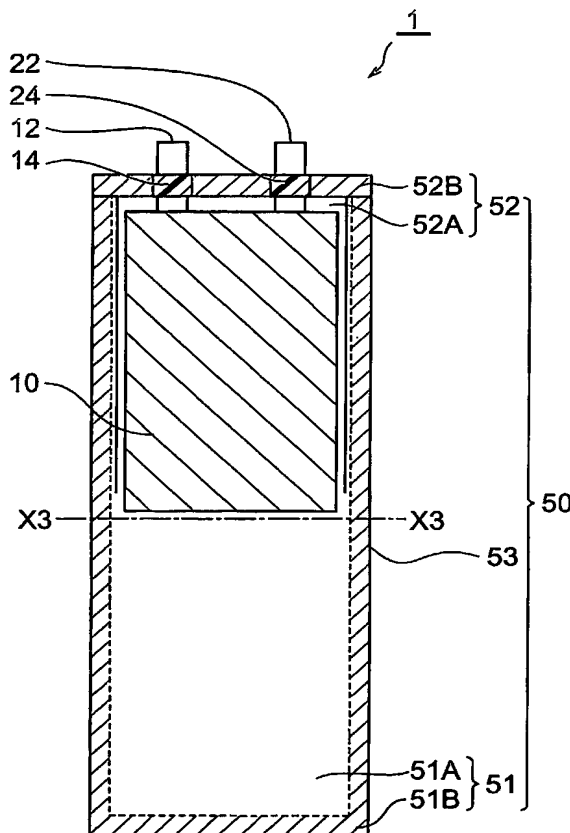
(10) 国際公開番号  
WO 2004/088691 A1

- (51) 国際特許分類<sup>7</sup>: H01G 13/00, 9/155, 9/10, H01M 2/06
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2004/004440
- (22) 国際出願日: 2004 年 3 月 29 日 (29.03.2004)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願2003-091388 2003 年 3 月 28 日 (28.03.2003) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): TDK 株式会社 (TDK CORPORATION) [JP/JP]; 〒1038272 東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 高橋 哲哉 (TAKA-HASHI, Tetsuya) [JP/JP]; 〒1038272 東京都中央区日本橋一丁目 1 3 番 1 号 TDK 株式会社内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外 (HASEGAWA, Yoshiaki et al.); 〒1040061 東京都中央区銀座一丁目 10 番 6 号 銀座ファーストビル 創英国際特許法律事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

[続葉有]

(54) Title: METHOD FOR MANUFACTURING ELECTROCHEMICAL DEVICE

(54) 発明の名称: 電気化学デバイスの製造方法



(57) Abstract: A method for manufacturing an electrochemical device comprising an electrochemical element (60) having a first electrode and a second electrode, a case composed of a first film (51) and a second film (52) for housing the electrochemical element, a first lead connected to the first electrode, and a second lead connected to the second electrode is disclosed. The method comprises a step wherein the edge portions of the films (51, 52) are brought into contact with each other and the films (51, 52) are heat sealed to each other by heating the contacted portions of the films (51, 52) while pressing them against each other. In this method, a die (93) (heating member) is used which has grooves formed in such positions that the first and second leads in the contacted portions are arranged, and the grooves have shapes corresponding to the sectional shapes of the first and second leads.

(57) 要約: 第1の電極及び第2の電極を有する電気化学デバイス素体60と、これらを收容する第1のフィルム51及び第2のフィルム52から形成されるケースと、第1の電極に接続された第1のリードと、第2の電極に接続された第2のリードとを有する電気化学デバイスの製造方法であり、フィルム51及び52の縁部同士を接触させ、フィルム51及び52の接触部分を押圧した状態で加熱によりフィルム51及び52とを熱融着させる工程を有しており、前記接触部分の第1のリード及び第2のリードが配置される部分に、各リードの断面の形状に応じた形状の溝の形成された金型93(加熱部材)を使用する。



- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

## 明細書

### 電気化学デバイスの製造方法

#### 技術分野

【０００１】 本発明は電気化学デバイスの製造方法に関し、より詳しくは、電気二重層キャパシタをはじめとする電気化学キャパシタ、及び、リチウムイオン二次電池をはじめとする２次電池を含む電気化学デバイスの製造方法に関する。

#### 背景技術

【０００２】 電気二重層キャパシタをはじめとする電気化学キャパシタ、及び、リチウムイオン二次電池をはじめとする非水電解質２次電池は、容易に小型化、軽量化が可能な電気化学デバイスであるため、例えば、携帯機器（小型電子機器）等の電源或いはバックアップ用電源、電気自動車又はハイブリッド車向けの補助電源として期待されている。

【０００３】 上記のバックアップ用電源又は補助電源として使用される電気化学デバイスには、電子機器の負荷要求の急激な変動に対して主電源の電力供給が十分に追従できない場合に、速やかに不足分の電力を供給して供給電力の平滑化を行うための機能が要求される場合がある。

【０００４】 例えば、携帯機器（小型電子機器）、電気自動車又はハイブリッド車の主電源としてリチウムイオン二次電池或いは燃料電池が検討されているが、これらの主電源は、急激な負荷要求の変動により瞬間的に大電流が流れると電池電圧が急激に低下する場合があります、その負荷要求の急激な変動（電流の急激な変動）に対して適切な電力供給を追従させることができなくなる場合があります。

【０００５】 そのため、主電源と容量の比較的大きな電気化学デバイス（電気化学キャパシタ又は２次電池）を組み合わせることによって電力の平滑化を行うことが検討されている。特に、主電源とキャパシタ容量の大きな電気二重層キャパシタ組み合わせることによって電力の平滑化を行うことが検討されている。

【０００６】 また、この場合、電気化学デバイス（電気化学キャパシタ又は２

次電池)には、小型化及び軽量化も要求されている。すなわち、電気化学デバイスの単位重量当たりのエネルギー密度の向上及び単位体積当たりのエネルギー密度の向上も同時に要求されている。

【0007】 そのため、合成樹脂の層や金属箔などの金属層を備えた複合包装フィルム(ラミネートフィルム)を2枚重ね合せてその縁部をヒートシール(熱融着)して作製した軽量のケース(封入袋)を、一対の電極(アノード及びカソード)及び電解質等の電気化学デバイスの構成要素を封入する外装容器として使用した構成のものが知られている(例えば、特開2000-294221号公報に記載の非水電解質2次電池、及び、特開2000-138040号公報に記載の非水電解質電池を参照)。この場合、一対の電極のそれぞれには、一方の端部が電氣的に接続されると共に他方の端部がケースの外部に突出される金属製のリードがそれぞれ接続されている。

【0008】 なお、本明細書においては、ケースの材料となる2枚のフィルムのそれぞれのヒートシール(熱融着)される側の面(以下、各フィルムの「内面」という)の縁部の領域を「シール部」という。

#### 発明の開示

【0009】 しかしながら、上記特許文献1及び特許文献2に記載の電池をはじめとするケースを用いた従来の電気化学デバイスでは、以下の条件で使用する場合に、ケースの内部に充填された電解質溶液がケース外部に漏れる「液漏れ」の発生を確実に防止できないという問題が生じることを本発明者らは見出した。電気化学デバイスの「液漏れ」が発生すると当該電気化学デバイスを搭載した電子機器の故障を招くことになる。

【0010】 すなわち、先に述べたように、補助電源となる電気化学デバイスに対して主電源の供給不可能な不足分の電力を速やかに供給して供給電力の平滑化を行うための機能が要求される場合、電気化学デバイスはできる限り内部抵抗が少なく、大電流での充放電が可能なものが望ましい。そのため、そのリード(電

流導出端子部)は電気抵抗を可能な限り小さくすることが望ましく、できる限り断面積の大きなリードを使用することが望ましい。

【0011】そこで、上記の観点から、大電流での充放電を可能とするために、厚さが0.05mm以上であり、かつ、断面積が $5.0 \times 10^{-4}$ 以上(好ましくは厚さが0.10mm以上であり、かつ、断面積が $2.0 \times 10^{-3} \text{ cm}^2$ 以上)であるリードを電極に接続して使用した場合、2枚のフィルムのシール部とリードとの熱融着、及び/又は、リードの周囲における2枚のフィルムのシール部間の熱融着が不十分となり易く、そのため、ケースの内部と外部とを連通する孔が極めて形成され易く、「液漏れ」の発生を確実に防止できないという問題があった。

【0012】図18A及び図18Bに基づいてより詳しく説明する。図18A及び図18Bは、従来の電気化学キャパシタの2枚のフィルムのシール部分のうちリードの周囲を示す模式部分断面図である。図18Aは2枚のフィルム100及び200でリード300をはさみ、ヒートシール(熱融着)した場合の模式部分断面図を示す。図18Bは2枚のフィルム100及び200と、リード300と、の間に接着剤の層400を設けて更にヒートシールした場合の模式部分断面図を示す。リード300の厚さが0.05mm以上であり、かつ、断面積が $5.0 \times 10^{-4} \text{ cm}^2$ 以上であると、図18A及び図18Bの何れの場合にも、リード300の周囲で2枚のフィルムの100及び200シール部分が十分に融着せず、ケースの内部と外部とを連通する孔500が極めて形成され易くなる。

【0013】ケースの内部と外部とを連通する孔500が形成されると、液漏れが生じて電池特性と寿命が低下することの他に、電解質溶液として非水電解質溶液(有機化合物を含む溶液)を使用している場合には、以下の問題も起こる。すなわち、外部からの空気の流入が起こり、空気に含まれる水分が非水電解質溶液と反応して酸を発生させ、デバイスの構成要素を腐食する場合や、空気に含まれる酸素により非水電解質溶液中の有機化合物の酸化反応が進行して電解質溶液が変質するなどの問題も生じて、この観点からも電池特性と寿命が低下する。

【0014】 本発明は、上記従来技術の有する課題に鑑みてなされたものであり、厚さが0.05mm以上であり、かつ、断面積が $5.0 \times 10^{-4} \text{ cm}^2$ 以上のリードを使用する場合であっても密封性に優れたケースを容易かつ確実に形成することができ、液漏れの発生を十分に防止できる優れた信頼性を有する電気化学デバイスの製造方法を提供することを目的とする。

【0015】 本発明者らは、上記目的を達成するべく鋭意研究を重ねた結果、フィルムを用いて形成したケースを有し、厚さが0.05mm以上であり、かつ、断面積が $5.0 \times 10^{-4} \text{ cm}^2$ 以上のリードを使用する電気化学デバイスを製造する場合、以下の熱処理工程を採用することが上記目的を達成する上で極めて有効であることを見出し、本発明に到達した。

【0016】 すなわち、本発明は、互いに対向する第1の電極及び第2の電極を有する電気化学デバイス素体と、互いに対向する第1のフィルム及び第2のフィルムにより形成されており、電気化学デバイス素体を密閉した状態で收容するケースと、第1の電極に一方の端部が接続されると共に他方の端部がケースの外部に突出される第1のリードと、第2の電極に一方の端部が接続されると共に他方の端部がケースの外部に突出される第2のリードと、を有する電気化学デバイスの製造方法であって、互いに対向する1対の加熱部材の間に、第1のフィルム及び第2のフィルムのそれぞれの縁部同士を接触させた状態で配置し、縁部同士の接触部分を押圧した状態で、1対の加熱部材のうちの少なくとも一方を加熱することにより、第1のフィルムと第2のフィルムとを熱融着させる熱融着工程を有しており、1対の加熱部材のうちの少なくとも一方には、第1のフィルム及び第2のフィルムの縁部間の第1のリード及び第2のリードが配置される部分に、第1のリード及び第2のリードのそれぞれの断面の形状に応じた形状の溝が形成されていること、を特徴とする電気化学デバイスの製造方法を提供する。

【0017】 ここで、本発明において、加熱部材の「第1のリードの断面の形状に応じた形状の溝」における「第1のリードの断面の形状に応じた形状の溝」

とは、第1のリードの断面形状及びその大きさに加えて、熱融着時に当該第1のリードに熱変形しながら密着させられる各フィルムの厚さ、及び、第1のリードに密着した状態での各フィルムの断面形状を考慮して、理論的或いは実験的に予め決定される形状及び大きさである。

5 【0018】 そのため、例えば、第1のリードの断面形状が略矩形状である場合、加熱部材の溝は、上記第1のリードと相似の断面形状及び大きさを有するように形成してもよく、後述の図15に示すように第1のリードに熱変形しながら密着させられる第1のフィルム及び第2のフィルムの厚さ及び断面形状を考慮して、例えば、略台形の形状となるように形成してもよい。

10 【0019】 また、加熱部材の「第2のリードの断面の形状に応じた形状の溝」における「第2のリードの断面の形状に応じた形状の溝」とは、第2のリードの断面形状及びその大きさに加えて、熱融着時に当該第2のリードに熱変形しながら密着させられる各フィルムの厚さ、及び、第2のリードに密着した状態での各フィルムの断面形状を考慮して、理論的或いは実験的に予め決定される形状及び  
15 大きさである。

【0020】 また、本発明において、「電気化学デバイス素体」とは、互いに対向する第1の電極及び第2の電極とを少なくとも有しており、これら第1の電極と第2の電極との間に、(1)絶縁性材料から形成されたセパレータ、又は、(2)固体電解質膜(固体高分子電解質からなる膜又はイオン伝導性無機材料を含む膜)  
20 が配置された構成を有する積層体を示す。なお、上記(1)の構成の場合には、第1の電極、第2の電極及びセパレータの内部に電解質溶液が含有されている構成を有していてもよく、第1の電極、第2の電極及びセパレータの内部に固体電解質(固体高分子電解質又はイオン伝導性無機材料からなる電解質)が含有されている構成を有していてもよい。また、「電気化学デバイス素体」は、上記(1)の構成及び上記(2)の構成のように、3層構造のもの他に、上記電極とセパレータ(又は固体電解質膜)とが交互に積層された5以上の構成を有していてもよい。  
25

【0021】 更に、本発明において、「電気化学デバイス」とは、上記電気化学デバイス素体と、互いに対向する第1のフィルム及び第2のフィルムにより形成されており、電気化学デバイス素体を密閉した状態で収容するケースと、第1の電極に一方の端部が接続されると共に他方の端部がケースの外部に突出される第1のリードと、第2の電極に一方の端部が接続されると共に他方の端部がケースの外部に突出される第2のリードと、少なくともを有する構成のデバイスを示す。

【0022】 より具体的には、「電気化学デバイス」とは、好ましくは2次電池又は電気化学キャパシタを示す。2次電池としては好ましくは、リチウムイオン二次電池等の非水電解質を使用する非水電解質2次電池、電解質水溶液を使用する2次電池等が挙げられる。電気化学キャパシタとしては、電気二重層キャパシタ、擬似容量キャパシタ、レドックスキャパシタ等が挙げられる。更に、大電流の充放電を円滑に行うことが可能な補助電源として使用する観点から、「電気化学デバイス」とは、より好ましくは上記電気化学キャパシタを示し、同様の観点から更に好ましくは電気二重層キャパシタを示す。

【0023】 ここで、本発明において、「第1のリード」は第1の電極に電氣的に接続されていればよく、例えば、第1のリード」と第1の電極との間に他の電子伝導性部材を配置してもよい。「第2のリード」も同様に、第2の電極に電氣的に接続されていればよい。

【0024】 ここで、本発明において、「加熱部材」は、第1のフィルム及び第2のフィルムに対し、これらが熱融着可能な熱を供給可能であれば、それ自身が発熱体であってもよく、他の発熱体からの熱を供給する熱伝導体であってもよい。また、本発明の製造方法では、熱融着工程において、1対の加熱部材のうちの少なくとも一方を加熱すればよい。

【0025】 更に、本発明において、「フィルム」とは、可とう性を有し、同種のフィルム同士で熱溶着が可能であり、かつ、金属製のリードに対して熱溶着が可能であフィルムを示す。



【0026】 上述のように、第1のリード及び第2のリードのそれぞれの形状及び大きさを有する溝の形成された加熱部材を使用することにより、熱溶着時において、各フィルムのシール部は第1のリード及び第2のリードの形状に合わせて形状変形しつつその表面に密着されることになる。そのため、第1のリード及び第2のリードの表面全体に各フィルムのシール部を十分に密着した状態で熱溶着を行うことができる。その結果、各フィルムのシール部のうちの第1のリード及び第2のリードの周囲の部分における密封性を十分に確保することができ、液漏れの発生を十分に防止可能となる。

【0027】 従って、本発明の製造方法によれば、第1のリード及び第2のリードとして厚さが0.05mm以上であり、かつ、断面積が $5.0 \times 10^{-4} \text{ cm}^2$ 以上のリードを使用する場合であっても、リードとフィルムとの密着性を十分に得ることができる。そのため、厚さが0.05mm以上であり、かつ、断面積が $5.0 \times 10^{-4} \text{ cm}^2$ 以上のリードを使用する場合であっても密封性に優れたケースを容易かつ確実に形成することができ、液漏れの発生を十分に防止できる優れた信頼性を有する電気化学デバイスを提供することができる。

【0028】 また、本発明の電気化学デバイスの製造方法では、軽量であり薄膜化が容易な可とう性を有するフィルムを用いて形成されたケースを使用するため、電気化学デバイス自体の形状を薄膜状とすることが容易にできる。そのため、本発明の製造方法では、小型化及び軽量化が容易な構成を有する電気化学デバイスを容易に構成することができる。そのため、本来の体積エネルギー密度を容易に向上させることができるとともに、電気化学デバイスの設置されるべき設置空間の単位体積当たりのエネルギー密度(以下、「設置されるべき空間の体積を基準とする体積エネルギー密度」という)も容易に向上させることができる。

【0029】 なお、電気化学デバイスの「体積エネルギー密度」とは、本来、電気化学デバイスの容器を含む全体積に対する全出力エネルギーの割合で定義されるものである。これに対して、「設置されるべき空間の体積を基準とする体積エ

エネルギー密度」とは、電気化学デバイスの最大縦、最大横、最大厚さに基づいて求められる見かけ上の体積に対する電気化学デバイスの全出力エネルギーの割合を意味する。実際に、電気化学デバイスを小型電子機器に搭載する場合、上述した本来の体積エネルギー密度の向上とともに、設置されるべき空間の体積を基準とする体積エネルギー密度を向上させることが、小型電子機器内の限られたスペースをデッドスペースを十分に低減した状態で有効利用する観点から重要となる。

【0030】 また、本発明の電気化学デバイスの製造方法は、第1のリード及び第2のリードとして、厚さが0.05～3.00mmである金属製のリードを使用すること、を特徴としていてもよい。

【0031】 先に述べたように、本発明の電気化学デバイスの製造方法では、第1のフィルム及び第2のフィルムのシール部に対する第1のリード及び前記第2のリード密着性を十分に確保することができるので、上記厚さの範囲のリードを使用しても信頼性に優れた電気化学デバイスを容易かつ確実に形成することができる。そして、キャパシタ容量を100～2000Fとし、上記厚さの範囲のリードを使用して電気二重層キャパシタを構成した場合には、10～200Aの電流での充放電が容易に可能となる。

【0032】 ここで、第1のリード及び前記第2のリードの厚さが0.05mm未満となると、リードの機械的強度が不足するためにその取り扱いが困難となる傾向が大きくなる。また、第1のリード及び前記第2のリードの厚さが5.00mmを超えると、厚さが5.0mm以下の薄型の電気化学デバイスを構成することが困難となり、先に述べた電気化学デバイス「設置されるべき空間の体積を基準とする体積エネルギー密度」を十分に確保することが困難となる傾向が大きくなる。

【0033】 また、薄型で、比較的大きな電流を充放電可能な電気化学デバイスを構成するという観点から、本発明の電気化学デバイスの製造方法では、第1のリード及び第2のリードとして、厚さが0.1～2.00mmであるリードを

使用することがより好ましい。

【0034】 更に、本発明の電気化学デバイスの製造方法は、第1のフィルム及び第2のフィルムの少なくとも一方における熱融着すべき縁部のうちの第1のリード及び第2のリードに接触する部分に対し、該部分が第1のリード及び第2のリードのそれぞれの断面の形状及び大きさに応じた形状及び大きさとなるように予め絞り加工を施して変形させておき、次いで、熱融着工程を行うことが好ましい。更に、上記予め絞り加工は、第1のフィルムの熱融着すべき縁部のうちの第1のリード及び第2のリードに接触する部分、及び、第2のフィルムの熱融着すべき縁部のうちの第1のリード及び第2のリードに接触する部分の両方に対して行なうことがより好ましい。

【0035】 これにより、先に述べた本発明の効果をより確実に得ることができる。特に、厚さが0.10mm以上であり、かつ、断面積が $2.0 \times 10^{-3} \text{ cm}^2$ 以上であるリードを電極に接続して使用した場合であっても、液漏れの発生を十分に防止することのできる電気化学デバイスをより容易かつより確実に構成することができる。

【0036】 なお、「絞り加工」とは、いわゆる深絞り成形を行うための加工であり、延伸機を用いて、その金型に必要な応じて加熱したフィルムを覆い被せて引き伸ばすことにより、フィルムのシール部の上述した該当部分の形状のみを選択的に延伸成形（延伸熱成形或いは延伸熱成形に加圧成形を更に併用する成形）して、第1のリード及び第2のリードのそれぞれの断面の形状及び大きさに応じた形状とし、必要な応じて続いて冷却する成形加工を示す。

【0037】 また、本発明の電気化学デバイスの製造方法は、第1のフィルム及び第2のフィルムの熱融着すべき縁部に上記絞り加工を施す場合には、液漏れの発生を十分に防止することのできる電気化学デバイスをより容易かつより確実に構成することができるので、第1のリード及び第2のリードとして、厚さが好ましくは0.10mm以上、より好ましくは0.10～5mm、更に好ましくは

0.50～2.00mmである金属製のリードを使用することを特徴としていてもよい。これにより、薄型で、比較的大きな電流を充放電可能な電気化学デバイスを容易かつ確実に構成することができる。

【0038】 更に、薄型で、比較的大きな電流を充放電可能な電気化学デバイスを構成するという観点から、本発明の電気化学デバイスの製造方法では、第1のリード及び第2のリードとして、断面積が好ましくは $5.0 \times 10^{-4} \sim 1.0 \text{ cm}^2$ 、より好ましくは $0.01 \sim 0.04 \text{ cm}^2$ である金属製のリードを使用することが好ましい。

【0039】 また、本発明の電気化学デバイスの製造方法では、第1の電極及び第2の電極として、平板状の形状を呈しており、電子伝導性の多孔体を構成材料として含む電極を使用し、セパレータとして、平板状の形状を呈しており、イオン透過性を有しかつ絶縁性を有する多孔体からなる部材を使用し、かつ、電解質溶液を、少なくともその一部が第1の電極及び第2の電極、及びセパレータの内部に含有させるようにケース中に充填することが好ましい。

【0040】 これにより、第1の電極、セパレータ及び第2の電極からなる積層体（以下、必要に応じて、電気化学デバイスの「素体」という）を薄膜状とすることができるので、電気化学デバイス自体の形状を薄膜状とすることがより容易かつより確実にできる。そのため、小型化及び軽量化が容易な構成を有する電気化学デバイスをより容易に構成することができる。

【0041】 また、本発明の電気化学デバイスの製造方法では、第1のフィルム及び第2のフィルムとして、電解質溶液に接触する合成樹脂製の最内部の層と、最内部の層の上方に配置される金属層とを少なくとも有する複合包装フィルムを使用することが好ましい。

【0042】 合成樹脂製の最内部の層を配置することにより第1のフィルム及び第2のフィルムの十分な可とう性が確保されるとともに、第1のフィルムのシール部と第2のフィルムのシール部との熱融着強度を十分に確保することができ

る。また、金属層を配置することにより、第1のフィルム及び第2のフィルムの  
十分な機械的強度が確保されるとともに、ケース内部の電解質溶液の構成成分の  
ケース外部への逸散と、ケース外部からケース内部への空気（水分及び酸素）の  
流入を十分に防止することができる。更に、合成樹脂製の最内部の層を金属層よ  
5 りも内側に配置することによりケース内部の電解質溶液の構成成分などによる金  
属層の腐食の進行が十分に防止される。

【0043】 これにより、液漏れの発生を十分に防止することのできる電気化  
学デバイスをより容易かつより確実に構成することができる。さらに、液漏れの  
発生を十分に防止する観点と十分な機械的強度を確保する観点から金属層の外側  
10 に更に合成樹脂製の層を配置することがより好ましい。

【0044】 更に、本発明の電気化学デバイスの製造方法では、第1のフィル  
ムの熱融着すべき縁部及び第2のフィルムの熱融着すべき縁部に接触する第1の  
リードの表面部分に合成樹脂製の接着剤を予め熱溶着又は塗布するとともに、第  
1のフィルムの熱融着すべき縁部及び第2のフィルムの熱融着すべき縁部に接触  
15 する第2のリードの表面部分に合成樹脂製の接着剤を予め塗布し、次いで、熱融  
着工程を行うことが好ましい。

【0045】 これにより、金属と複合包装フィルムとの接着状態が良好となる  
とともに第1のリード及び第2のリードの周囲に上記接着剤からなる層が形成さ  
れるため、第1のフィルム及び第2のフィルムのそれぞれのシール部のうちの第  
20 1のリード及び第2のリードの周囲の部分における密封性を十分に確保すること  
がより確実にできる。

【0046】 また、上記の場合、合成樹脂製の接着剤として、変性ポリプロピ  
レン、変性ポリエチレン及びエポキシ樹脂からなる群より選択される少なくとも  
1種の樹脂を構成材料として含む接着剤を使用することが好ましい。

【0047】 本発明において、「電解質溶液」は液状の状態以外にゲル化剤を添  
加することにより得られるゲル状電解質であってもよい。

## 図面の簡単な説明

【0048】 図1は、本発明の製造方法の好適な一実施形態により製造される電気化学デバイス（電気二重層キャパシタ）を示す正面図である。

【0049】 図2は、図1に示す電気化学デバイス（電気二重層キャパシタ）の内部をアノード10の表面の法線方向からみた場合の展開図である。

【0050】 図3は、図1に示す電気化学デバイス（電気二重層キャパシタ）を図1のX1-X1線に沿って切断した場合の模式断面図である。

【0051】 図4は、図1に示す電気化学デバイス（電気二重層キャパシタ）を図1のX2-X2線に沿って切断した場合の要部を示す模式断面図である。

【0052】 図5は、図1に示す電気化学デバイス（電気二重層キャパシタ）を図1のY-Y線に沿って切断した場合の要部を示す模式断面図である。

【0053】 図6は、図1に示す電気化学デバイス（電気二重層キャパシタ）のケースの構成材料となるフィルムの基本構成の一例を示す模式断面図である。

【0054】 図7は、図1に示す電気化学デバイス（電気二重層キャパシタ）のケースの構成材料となるフィルムの基本構成の別の一例を示す模式断面図である。

【0055】 図8は、図1に示す電気化学デバイス（電気二重層キャパシタ）のアノードの基本構成の一例を示す模式断面図である。

【0056】 図9は、図1に示す電気化学デバイス（電気二重層キャパシタ）のカソードの基本構成の一例を示す模式断面図である。

【0057】 図10は、電極形成用塗布液を調製する工程を説明するための説明図である。

【0058】 図11は、電極形成用塗布液を用いた電極シートの形成工程を説明するための説明図である。

【0059】 図12は、電極形成用塗布液を用いた電極シートの形成工程を説明するための説明図である。

【0060】 図13A～図13Cは、電極シートから電極を形成する工程を説明するための説明図である。

【0061】 図14A～図14Cは、第1のフィルム51のシール部51Bに絞り加工を施す際の手順を説明するための説明図である。

5 【0062】 図15は、熱融着工程によりアノード用リード導体12の周囲を第1のフィルム51及び第2のフィルム52に熱融着させる場合の手順を説明するための説明図である。

【0063】 図16は、ケース内に電解質溶液を充填する際の手順の一例を示す説明図である。

10 【0064】 図17は、ケースのシール部を折り曲げた場合の電気化学デバイスを示す斜視図である。

【0065】 図18A及び図18Bは、従来の電気化学キャパシタの2枚のフィルムのシール部分のうちリードの周囲を示す模式部分断面図である。

#### 発明を実施するための最良の形態

15 【0066】 以下、図面を参照しながら本発明の電気化学デバイスの製造方法の好適な一実施形態について詳細に説明する。なお、以下の説明では、同一または相当部分には同一符号を付し、重複する説明は省略する。

20 【0067】 図1は本発明の製造方法の好適な一実施形態により製造される電気化学デバイスの一例（電気二重層キャパシタ）を示す正面図である。また、図2は図1に示す電気化学デバイス1の内部をアノード10の表面の法線方向からみた場合の展開図である。更に、図3は図1に示す電気化学デバイスを図1のX1-X1線に沿って切断した場合の模式断面図である。また、図4は図1に示す電気化学デバイスを図1のX2-X2線に沿って切断した場合の要部を示す模式断面図である。

25 【0068】 図1～図5に示すように、電気二重層キャパシタ1は、主として、互いに対向する平板状のアノード10（第1の電極）及び平板状のカソード20

(第2の電極)と、アノード10とカソード20との間に隣接して配置される平板状のセパレータ40と、電解質溶液30と、これらを密閉した状態で収容するケース50と、アノード10に一方の端部が電氣的に接続されると共に他方の端部がケース50の外部に突出されるアノード用リード12(第1のリード)と、  
5 カソード20に一方の端部が電氣的に接続されると共に他方の端部がケース50の外部に突出されるカソード用リード22(第2のリード)とから構成されている。ここで、「アノード」10及び「カソード」20は説明の便宜上、電気化学デバイス1の放電時の極性を基準に決定したものである。

【0069】そして、電気化学デバイス1は、以下に説明する構成を有している。  
10 以下、図1～図9に基づいて本実施形態の各構成要素の詳細を説明する。

【0070】ケース50は、先に述べたように、互いに対向する第1のフィルム51及び第2のフィルム52とを有している。ここで、図2に示すように、この電気化学デバイス1においては、第1のフィルム51及び第2のフィルム52は連結されている。すなわち、ケース50は、一枚の複合包装フィルムからなる  
15 矩形状のフィルムを、図2に示す折り曲げ線X3-X3において折り曲げ、矩形状のフィルムの対向する1組の縁部同士(図中の第1のフィルム51の縁部51B及び第2のフィルム52の縁部52B)を重ね合せ、後述する熱融着工程においてヒートシール(熱融着)を行うことにより形成されている。

【0071】そして、第1のフィルム51及び第2のフィルム52は、1枚の  
20 矩形状のフィルムを上述のように折り曲げた際にできる互いに対向する面(F51及びF52)を有する該フィルムの部分をそれぞれ示す。ここで、接合された後の第1のフィルム51及び第2のフィルム52のそれぞれの縁部を「シール部」という。

【0072】これにより、折り曲げ線X3-X3の部分に第1のフィルム51  
25 と第2のフィルム52とを接合させるためのシール部を設ける必要がなくなるため、ケース50におけるシール部をより低減することができる。その結果、電気



化学デバイス 1 の設置されるべき空間の体積を基準とする体積エネルギー密度をより向上させることができる。

【0073】 そして、本実施形態の場合、図 1 及び図 2 に示すように、アノード 10 に接続されたアノード用リード 12 及びカソード用リード 22 のそれぞれ  
5 の一端が上述の第 1 のフィルム 51 の縁部 51B 及び第 2 のフィルム 52 の縁部 52B とを接合したシール部から外部に突出するように配置されている。そして、このアノード用リード 12 及びカソード用リード 22 と、第 1 のフィルム 51 の縁部 51B 及び第 2 のフィルム 52 の縁部 52B とは、後述する溝の形成された加熱部材である金型 93（図 15 参照）を用いてヒートシール（熱融着）されて  
10 いる。これにより、ケース 50 の十分な密封性が確保されている。

【0074】 また、第 1 のフィルム 51 及び第 2 のフィルム 52 を構成するフィルムは先に述べたように、可とう性を有するフィルムである。フィルムは軽量であり薄膜化が容易なため、電気化学デバイス 1 自体の形状を薄膜状とすることができる。そのため、本来の体積エネルギー密度を容易に向上させることができるとともに、電気化学デバイス 1 の設置されるべき空間の体積を基準とする体積  
15 エネルギー密度も容易に向上させることができる。

【0075】 このフィルムは可とう性を有するフィルムであれば特に限定されないが、ケース 50 の十分な機械的強度と軽量性を確保しつつ、ケース 50 外部からケース 50 内部への水分や空気の侵入及びケース 50 内部からケース 50 外部への電解質成分の逸散を効果的に防止する観点から、電解質溶液に接触する合成樹脂製の最内部の層と、最内部の層の上方に配置される金属層とを少なくとも  
20 有する「複合包装フィルム」であることが好ましい。

【0076】 第 1 のフィルム 51 及び第 2 のフィルム 52 として使用可能な複合包装フィルムとしては、例えば、図 6 及び図 7 に示す構成の複合包装フィルムが挙げられる。  
25

【0077】 図 6 示す複合包装フィルム 53 は、その内面 F 50a において電

解質溶液に接触する合成樹脂製の最内部の層 50 a と、最内部の層 50 a のもう一方の面（外側の面）上に配置される金属層 50 c と有する。また、図 7 示す複合包装フィルム 54 は、図 6 示す複合包装フィルム 53 の金属層 50 c の外側の面に更に合成樹脂製の最外部の層 50 b が配置された構成を有する。

5 【0078】 第1のフィルム51及び第2のフィルム52として使用可能な複合包装フィルムは、上述の最内部の層 50 a をはじめとする1以上の合成樹脂の層、金属箔などの金属層 50 c を備えた2以上の層を有する複合包装材であれば特に限定されないが、上記と同様の効果をより確実に得る観点から、図 7 に示した複合包装フィルム 54 のように、最内部の層 50 a と、最内部の層 50 a から  
10 最も遠いケース 50 の外表面の側に配置される合成樹脂製の最外部の層 50 b と、最内部の層 50 a と最外部の層 50 b との間に配置される少なくとも1つの金属層 50 c とを有する3層以上の層から構成されていることがより好ましい。

【0079】 最内部の層 50 a は可とう性を有する層であり、その構成材料は上記の可とう性を発現させることが可能であり、かつ、使用される電解質溶液に対する化学的安定性（化学反応、溶解、膨潤が起こらない特性）、並びに、酸素及び水（空気中の水分）に対する化学的安定性を有している合成樹脂であれば特に  
15 限定されないが、更に酸素、水（空気中の水分）及び電解質溶液の成分に対する透過性の低い特性を有している材料が好ましい。例えば、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエチレン酸変成物、ポリプロピレン酸変成物、ポリエチレンアイオノマー、ポリプロピレンアイオノマー等の熱可塑性樹脂などが挙げられる。

20 【0080】 また、上述した図 7 に示した複合包装フィルム 54 のように、最内部の層 50 a 以外に、最外部の層 50 b 等のような合成樹脂製の層を更に設ける場合、この合成樹脂製の層も、上記最内部の層と同様の構成材料を使用してよい。更に、この合成樹脂製の層としては、例えば、ポリエチレンテレフタレート（PET）、ポリアミド（ナイロン）等のエンジニアリングプラスチックからなる層を使用してもよい。

【0081】 また、ケース50における全てのシール部のシール方法は、生産性の観点から、ヒートシール（熱溶着）法であることが好ましい。この電気化学デバイスの場合、特に、アノード用リード12及びカソード用リード22がケース50外部に突出する部分のシール部はヒートシール（熱溶着）法によりシールされている。

【0082】 金属層50cとしては、酸素、水（空気中の水分）及び電解質溶液に対する耐腐食性を有する金属材料から形成されている層であることが好ましい。例えば、アルミニウム、アルミニウム合金、チタン、ニッケル等からなる金属箔を使用してもよい。

【0083】 また、シール部となる第1のフィルム51の縁部51B及び第2のフィルム52の縁部52Bの大きさについては、第1のフィルム51及び第2のフィルム52が図1に示した略矩形状のフィルムである場合、フィルムの縦（図1のY-Y線に平行な方向）の長さA1に対するシール部の幅H1（フィルムの縦と同方向の厚さ）は、0.5mmを下限とし、 $(A1/H1)$ が5以上の条件を満たしていることが好ましい。なお、この条件は、図1に示したようにシール部がフィルム的一端のみに形成される場合の条件である。シール部がフィルムの両端に形成される場合には、フィルムの縦の長さA1に対するシール部の幅H3（ $=2H1$ ）は、 $(A1/H3)$ が10以上の条件を満たしていることが好ましい。また、フィルムの横（図1のX1-X1線に平行な方向）の長さA2に対するシール部の幅H2（フィルムの横と同方向の厚さ）は、片側につき0.5mmを下限とし、 $(A2/H2)$ が2.5以上となる条件を満たしていることが好ましい。

【0084】 上述の $(A1/H1)$ 、 $(A1/H3)$ 及び $(A2/H2)$ がそれぞれ上述の下限値未満であると、ケース50の密封性を十分に確保することが困難となる傾向が大きくなる。また、上述の $(A1/H1)$ 、 $(A1/H3)$ 及び $(A2/H2)$ がそれぞれ上述の割合を下まわると、電気化学デバイス1の「設置されるべき空間の体積を基準とする体積エネルギー密度」を十分に確保することが

困難となる傾向が大きくなる。

【0085】 次に、アノード10及びカソード20について説明する。図8は図1に示す電気化学デバイスのアノード10の基本構成の一例を示す模式断面図である。また、図9は、図1に示す電気化学デバイス1のカソード20の基本構成の一例を示す模式断面図である。

【0086】 図8に示すようにアノード10は、電子伝導性を有する集電体からなる集電体層16と、該集電体層16上に形成された電子伝導性を有する多孔体からなる多孔体層18とからなる。また、図9に示すようにカソード20は、集電体26と、該集電体26上に形成された電子伝導性の多孔体からなる多孔体層28とからなる。

【0087】 集電体層16及び集電体26は、多孔体層18及び多孔体層28への電荷の移動を充分に行うことができる良導体であれば特に限定されず、公知の電気二重層キャパシタに用いられている集電体を使用することができる。例えば、集電体層16及び集電体26としては、アルミニウムなどの金属箔等が挙げられる。

【0088】 多孔体層18及び多孔体層28の構成材料としては、特に限定されず、公知の電気二重層キャパシタに用いられている炭素電極等の分極性電極を構成する多孔体層に使用されているものと同様の材料を使用することができる。例えば、原料炭（例えば、石油系重質油の流動接触分解装置のボトム油や減圧蒸留装置の残さ油を原料油とするディレードコーカーより製造された石油コークス等）を賦活処理することにより得られる炭素材料（例えば、活性炭）を構成材料の主成分としているものを使用することができる。その他の条件（バインダー等の炭素材料以外の構成材料の種類とその含有量）は特に限定されるものではない。例えば、炭素粉末に導電性を付与するための導電性補助剤（カーボンブラック等）と、例えばバインダー（ポリテトラフルオロエチレン、以下、PTFEという）とが添加されていてもよい。

【0089】 アノード10とカソード20との間に配置されるセパレータ40は、イオン透過性を有しかつ絶縁性を有する多孔体から形成されていれば特に限定されず、公知の電気二重層キャパシタ等の電気化学デバイスに用いられているセパレータを使用することができる。例えば、絶縁性の多孔体としては、ポリエチレン、ポリプロピレン又はポリオレフィンからなるフィルムの積層体や上記樹脂の混合物の延伸膜、或いは、セルロース、ポリエステル及びポリプロピレンからなる群より選択される少なくとも1種の構成材料からなる繊維不織布が挙げられる。

【0090】 ただし、電解質溶液との接触界面を十分に確保する観点から、多孔体層18の空隙体積は、多孔体層体積100 $\mu$ Lの時に50～75 $\mu$ Lであることが好ましい。なお、この多孔体層18の空隙体積を求める方法も特に限定されず、公知の方法により求めることができる。

【0091】 また、カソード20の集電体28は、例えばアルミニウムからなるカソード用リード22の一端に電氣的に接続され、カソード用リード22の他端はケース50の外部に延びている。一方、アノード10の集電体18も、例えば銅又はニッケルからなるアノード用リード導体12の一端に電氣的に接続され、アノード用リード導体12の他端はケース14の外部に延びている。

【0092】 電解質溶液30はケース50の内部空間に充填され、その一部は、アノード10及びカソード20、及びセパレータ40の内部に含有されている。

【0093】 この電解質溶液30は、特に限定されず、公知の電気二重層キャパシタ等の電気化学デバイスに用いられている電解質溶液（電解質水溶液、有機溶媒を使用する電解質溶液）を使用することができる。ただし、電気二重層キャパシタの場合電解質水溶液は電気化学的に分解電圧が低いことにより、キャパシタの耐用電圧が低く制限されるので、有機溶媒を使用する電解質溶液（非水電解質溶液）であることが好ましい。

【0094】 更に、電解質溶液30の種類は特に限定されないが、一般的には

溶質の溶解度、解離度、液の粘性を考慮して選択され、高導電率でかつ高電位窓（分解開始電圧が高い）の電解質溶液であることが望ましい。例えば、代表的な例としては、テトラエチルアンモニウムテトラフルオロボレイトのような4級アンモニウム塩を、プロピレンカーボネート、ジエチレンカーボネート、アセトニトリルなどの有機溶媒に溶解したものが使用される。なお、この場合、混入水分を厳重に管理する必要がある。

【0095】 更に、図1及び図2に示すように、第1のフィルム51の縁部51B及び第2のフィルム52の縁部52Bからなるケースのシール部に接触するアノード用リード12の部分の部分には、アノード用リード12と各フィルムとの密着性を十分に確保するとともにアノード用リード12と各フィルムを構成する複合包装フィルム中の金属層50cとの電氣的な接触を防止するための接着剤（絶縁体）からなる接着剤層14が被覆されている。更に、第1のフィルム51の縁部51B及び第2のフィルム52の縁部52Bからなるケースのシール部に接触するカソード用リード22の部分には、カソード用リード22と各フィルムとの密着性を十分に確保するとともにカソード用リード22と各フィルムを構成する複合包装フィルム中の金属層50cとの電氣的な接触を防止するための接着剤（絶縁体）からなる接着剤層24が被覆されている。

【0096】 これら接着剤層14及び接着剤層24の構成材料となる接着剤は金属と合成樹脂の両方に密着することが可能な合成樹脂を含む接着剤であれば特に限定されないが、十分な密着性を確保する観点から、変性ポリプロピレン、変性ポリエチレン及びエポキシ樹脂からなる群より選択される少なくとも1種の樹脂を構成材料として含む接着剤であることが好ましい。なお、アノード用リード12及びカソード用リード22のそれぞれに対する複合包装フィルムの密着性を確保し、複合包装フィルム中の金属層の接触が十分に防止可能であれば、これら接着剤層14及び接着剤層24は配置しない構成としてもよい。

【0097】 アノード用リード12及びカソード用リード22は金属製の部材

から形成されている。それぞれの厚さ（ケース 50 のシール部の略法線方向に平行な方向の厚さ）は、0.05～5.00 mm であることが好ましく、0.10～3.00 mm であることがより好ましく、0.10～2.00 mm であることが更に好ましい。また、それぞれの断面積は、 $5.0 \times 10^{-4} \sim 1.0 \text{ cm}^2$  であることが好ましく、0.01～0.40  $\text{cm}^2$  であることがより好ましい。このように、厚さが 0.05 mm 以上であり、かつ、断面積が  $5.0 \times 10^{-4} \text{ cm}^2$  以上のアノード用リード 12 及びカソード用リード 22 使用する場合であっても、本発明の製造方法では、密封性に優れたケース 50 を容易かつ確実に形成することができ、液漏れの発生を十分に防止できる優れた信頼性を有する電気化学デバイス 1 を構成することができる。

【0098】 次に、上述したケース 50 及び電気化学デバイス 1（電気二重層キャパシタ）の作製方法（本発明の製造方法の好適な一実施形態）について説明する。

【0099】 先ず、素体 60（アノード 10、セパレータ 40 及びカソード 20 がこの順で順次積層された積層体）の製造方法の好適な一例について説明する。

【0100】 以下、図 10～図 12 及び図 13A～図 13C に基づいてアノード 10 及びカソード 20 となる電極が炭素電極の場合についての製造方法の好適な一例について説明する。図 10 は、電極形成用塗布液を調製する工程を説明するための説明図である。図 11 及び図 12 は、電極形成用塗布液を用いた電極シート形成工程を説明するための説明図である。図 13A～図 13C は、電極シートから電極を形成する工程を説明するための説明図である。

【0101】 先ず、アノード 10 及びカソード 20 となる電極が炭素電極の場合、図 10 に示すように、攪拌子 SB1 を入れた容器 C1 中に、賦活処理済みの活性炭等の炭素材料からなる 5～100  $\mu\text{m}$  程度の粒子 P1、導電性補助剤（先に述べたカーボンブラック、粉末グラファイト等）からなる粒子 P2、結着剤（先に述べた PTFE、PVDF、PE、PP、フッ素ゴム等）からなる粒子 P3、

上記結着剤を溶解するとともに粒子P 1及び粒子P 2を分散可能な溶剤Sを投入し、攪拌することにより電極形成用塗布液を調製する。

【0102】 なお、電気化デバイスとして2次電池を製造する場合等、アノード10とカソード20との構成材料が異なる場合には、異なる構成材料からなる粒子を含む2種類の電極形成用塗布液を調製する。

【0103】 また、上記の電極形成用塗布液を調整せずに、例えば、炭素材料を5～100 $\mu$ m程度に粉砕し粒度を整えた後、例えば炭素粉末に導電性を付与するための導電性補助剤と、例えば、結着剤とを添加して混練して混練物を調製し、この混練物を圧延伸してシート状に成形することにより電極を製造してもよい。この場合には、炭素材料を粉砕した微粒子とカーボンブラックとが均等に分布し、ほぼ同一強度でPTFE繊維でからめられる必要があり、混練を充分に行い、一般に繰り返し圧延伸を縦横に行うことが好ましい。

【0104】 次に、上記の電極形成用塗布液、並びに、図11及び図12に示すような装置70及び装置80を用いてに示す電極シートを形成する。なお、以下の説明においては、アノード10用の電極シートES10（図13A参照）、及び、電極シートES10から得られるアノード10の形成方法について説明し、アノード10と同様の構成を有するカソード20の形成方法については省略する。

【0105】 図11に示す装置70は、主として、第1のロール71と、第2のロール72と、第1のロール71と第2のロール72との間に配置される乾燥機73と、2つの支持ロール79とから構成されている。第1のロール71は、円柱状の巻心74とテープ状の積層体シート75とから構成されている。この積層体シート75の一端は巻心74に接続されており、更に積層体シート75は巻心74に巻回されている。更に積層体シート75は、基体シートB1上に金属箔シート160が積層された構成を有している。

【0106】 また、第2のロール72は、上記積層体シート75の他端が接続された円柱状の巻芯76を有している。更に、第2のロール72の巻芯76には



当該巻芯 7 6 を回転させるための巻芯駆動用モータ（図示せず）が接続されており、電極形成用の塗布液 L 1 を塗布し更に乾燥機 7 3 中において乾燥処理を施された後の積層体シート 7 7 が所定の速度で巻回されるようになっている。

【0107】 先ず、巻芯駆動用モータが回転すると、第 2 のロール 7 2 の巻芯 7 6 が回転し、第 1 のロール 7 1 の巻心 7 4 に巻回されている積層体シート 7 5 が第 1 のロール 7 1 の外部に引き出される。次に、引き出された積層体シート 7 5 の金属箔シート 1 6 0 上に、電極形成用塗布液 L 1 を塗布する。これにより、金属箔シート 1 6 0 上には電極形成用塗布液 L 1 からなる塗膜 L 2 が形成される。次に、巻芯駆動用モータの回転により、塗膜 L 2 の形成された積層体シート 7 5 の部分は、支持ロール 7 9 により乾燥機 7 3 中に導かれる。乾燥機 7 3 中において、積層体シート 7 5 上の塗膜 L 2 は乾燥されて電極とされたときの多孔体層 1 8 の前駆体となる層 7 8（以下、「前駆体層 7 8」という）となる。そして、巻芯駆動用モータの回転により、積層体シート 7 5 上に前駆体層 7 8 の形成された積層体シート 7 7 は、支持ロール 7 9 により巻芯 7 6 へ導かれて巻芯 7 6 に巻回される。

【0108】 次に、上記の積層体シート 7 7 と、図 1 2 に示す装置 8 0 を使用して電極シート E S 1 0 を作製する。

【0109】 図 1 2 に示す装置 8 0 は、主として、第 1 のロール 8 1 と、第 2 のロール 8 2 と、第 1 のロール 8 1 と第 2 のロール 8 2 との間に配置されるロールプレス機 8 3 とから構成されている。第 1 のロール 8 1 は、円柱状の巻心 8 4 と先に述べたテープ状の積層体シート 7 7 とから構成されている。この積層体シート 7 7 の一端は巻心 8 4 に接続されており、更に積層体シート 7 7 は巻心 8 4 に巻回されている。積層体シート 7 7 は、基体シート B 1 上に金属箔シート 1 6 0 が積層された積層体シート 7 5 上に前駆体層 7 8 が更に積層された構成を有している。

【0110】 また、第 2 のロール 8 2 は、上記積層体シート 7 7 の他端が接続

された円柱状の巻芯 8 6 を有している。更に、第 2 のロール 8 2 の巻芯 8 6 には当該巻芯 8 6 を回転させるための巻芯駆動用モータ（図示せず）が接続されており、ロールプレス機 8 3 中においてプレス処理を施された後の積層体シート 8 7 が所定の速度で巻回されるようになっている。

5 【0111】 先ず、巻芯駆動用モータが回転すると、第 2 のロール 8 2 の巻芯 8 6 が回転し、第 1 のロール 8 1 の巻芯 8 4 に巻回されている積層体シート 7 7 が第 1 のロール 8 1 の外部に引き出される。次に、巻芯駆動用モータの回転により、積層体シート 7 7 は、ロールプレス機 8 3 中に導かれる。ロールプレス機 8 3 中には、2つの円柱状のローラ 8 3 A とローラ 8 3 B が配置されている。ローラ 8 3 A とローラ 8 3 B とは、これらの間に積層体シート 7 7 が挿入されるよう  
10 に配置されており、これらの間に積層体シート 7 7 が挿入される際に、ローラ 8 3 A の側面と積層体シート 7 7 の前駆体層 7 8 の外表面が接触し、ローラ 8 3 B の側面と積層体シート 7 7 の基体シート B 1 の外表面（裏面）が接触する状態となり、かつ、所定の温度と圧力で積層体シート 7 7 を押圧できるように設置され  
15 ている。

【0112】 また、この円柱状のローラ 8 3 A 及びローラ 8 3 B は、それぞれが積層体シート 7 7 の移動方向に従う方向に回転する回転機構が備えられている。更に、この円柱状のローラ 8 3 A 及びローラ 8 3 B は、それぞれの底面間の長さが積層体シート 7 7 の幅以上となる大きさを有している。

20 【0113】 ロールプレス機 8 3 中において、積層体シート 7 7 上の前駆体層 7 8 は必要に応じて加熱及び加圧処理され、多孔体層 1 8 0（アノードとされたときの多孔体層 1 8）となる。そして、巻芯駆動用モータの回転により、積層体シート 7 7 上に多孔体層 1 8 0 の形成された積層体シート 8 7 は、巻芯 8 6 に巻回される。

25 【0114】 次に、図 1 3 A に示すように、巻芯 8 6 に巻回された積層体シート 8 7 を所定の大きさに切断し、電極シート E S 1 0 を得る。なお、図 1 3 A に

示す電極シートE S 1 0の場合、金属箔シート1 6 0の表面が露出した縁部1 2 0が形成されている。縁部1 2 0は、電極形成用塗布液L 1を積層体シート7 5の金属箔シート1 6 0上に塗布する際に、金属箔シート1 6 0の中央部にのみ電極形成用塗布液L 1を塗布するように調節することにより形成することができる。

5 【0 1 1 5】 次に、図1 3 Bに示すように、作製する電気化学デバイスのスケールに合わせて、電極シートE S 1 0を打ち抜き、図1 3 Cに示すアノード1 0を得る。このとき、先に述べた縁部1 2 0の部分がアノード用リード1 2として含まれるように電極シートE S 1 0を打ち抜くことにより、予めアノード用リード1 2が一体化された状態のアノード1 0を得ることができる。なお、アノード用リード導体1 2及びカソード用リード2 2を接続していない場合には、アノード用リード導体1 2及びカソード用リード2 2を別途用意し、アノード1 0及びカソード2 0のそれぞれに対して電氣的に接続する。

10 【0 1 1 6】 次に、別途用意したセパレータ4 0をアノード1 0とカソード2 0との間に接触した状態で配置し、素体6 0を完成する。

15 【0 1 1 7】 ここで、電気化学デバイス1において、アノード1 0とカソード2 0との間に配置されるセパレータ4 0は、その一方の面をアノード1 0のカソード2 0側の面（以下、「内面」という）に接触した状態で配置されており、かつ、他方の面をカソード2 0のアノード1 0側の面（以下、「内面」という）に接触した状態で配置されている。すなわち、セパレータ4 0は、アノード1 0及びカソード2 0に対して接触した状態で配置されているが、熱圧着等により接合された状態とはなっていない。

20 【0 1 1 8】 セパレータ4 0を熱圧着等によりアノード1 0及びカソード2 0に接合させると、1) 両電極中の電気二重層形成に寄与する細孔或は空隙が潰される、2) セパレータ4 0中の細孔も部分的に潰されるため、内部抵抗が大きくなる。特に、小型電子機器に搭載されるキャパシタ容量の小さな小型の電気化学デバイスとして使用する場合には、内部抵抗（インピーダンス）の僅かの差が顕

著に放電特性に影響する。内部抵抗が増大すると、オーム損（I R 損）が大きくなり放電特性が低下する。特に大電流を放電させる場合にオーム損が大きくなり、放電が不可能になる場合がある。そのため、この電気化学デバイス 1（電気二重層キャパシタ）では、セパレータ 40 がアノード 10 及びカソード 20 に対して  
5 上述のように接触した状態で配置された構成を採用する。

【0119】 また、上述のようにセパレータ 40 がアノード 10 及びカソード 20 に対して接触した状態で配置された構成を採用する場合、セパレータ 40 とアノード 10 との接触状態、及び、セパレータ 40 とカソード 20 との接触状態は、それぞれ空隙が最小値となるように調節されることが必要となる。セパレー  
10 タ 40 とアノード 10 との接触状態及びセパレータ 40 とカソード 20 との接触状態が不十分であると、電気化学デバイス 1（電気二重層キャパシタ）の内部抵抗が増大して放電特性が低下する。

【0120】 次に、ケース 50 の作製方法について説明する。まず、第 1 のフィルム及び第 2 のフィルムを先に述べた複合包装フィルムから構成する場合には、  
15 ドライラミネーション法、ウエットラミネーション法、ホットメルトラミネーション法、エクストルージョンラミネーション法等の既知の製造法を用いて作製する。

【0121】 例えば、複合包装フィルムを構成する合成樹脂製の層となるフィルム、アルミニウム等からなる金属箔を用意する。金属箔は、例えば金属材料を  
20 圧延加工することにより用意することができる。

【0122】 次に、好ましくは先に述べた複数の層の構成となるように、合成樹脂製の層となるフィルムの上に接着剤を介して金属箔を貼り合わせる等して複合包装フィルム（多層フィルム）を作製する。そして、複合包装フィルムを所定の大きさに切断し、矩形状のフィルムを 1 枚用意する。

【0123】 次に、矩形状のフィルムの熱融着すべき縁部のうちのアノード用  
25 リード 12 及びカソード用のリード 22 に接触する部分に対し、該部分がアノー

ド用リード12及びカソード用のリード22のそれぞれの断面の形状及び大きさに応じた形状及び大きさとなるように予め絞り加工を施す。また、素体60を収容する部分にも絞り加工を施してもよい。

【0124】 この場合、絞り加工を施すのは、矩形状のフィルムの第1のフィルム51となる側のシール部51B及び第2のフィルム52となる側のシール部52Bのうちの少なくとも一方でよい。

【0125】 矩形状のフィルムに上記の絞り加工を施すことにより、アノード用リード12及びカソード用のリード22として、厚さが0.05～5.00mm、特に0.10～2.00mmである金属製のリードを使用する場合であっても、ケース50の十分な密封性を確保することができる。

【0126】 図14A～図14Cに基づいて矩形状のフィルムに上記の絞り加工を施す手順について、第1のフィルム51となる側のシール部51Bを加工する場合を例にして説明する。図14A～図14Cは、第1のフィルム51のシール部51Bに絞り加工を施す際の手順を説明するための説明図である。

【0127】 先ず、図14Aに示すように、使用するアノード用リード12の断面の形状及び大きさに適合した形状及び大きさの溝91A（凹部）の形成された第1の加熱部材である金型91と、第1のフィルム51の厚さ並びに溝91Aの形状及び大きさを考慮した凸部92Aを有する第2の加熱部材である金型92とを使用し、これらの間に第1のフィルム51のシール部51Bの加工すべき部分を配置する。なお、図14A及び図14Bの場合、溝91Aの形状及び大きさは、後述の熱融着工程において、アノード用リード12に熱変形しながら密着させられる第1のフィルム51の厚さ及び断面形状を考慮して、略台形の形状となるように形成されている。

【0128】 次に、図14Bに示すように、金型91の溝91Aの形成された面と、金型92の凸部92Aを噛み合わせるようにして、第1のフィルムの加工すべき部分を徐々に押圧し、加工すべき部分を変形させる。このとき、金型91

及び金型 9 2 のうちの少なくとも一方の部材の温度が所定の温度（例えば、20～90℃）となるように加熱してもよい。

【0129】 これにより、図 1 4 C に示すアノード用リード 1 2 の断面の形状及び大きさに適合した形状を有する第 1 のフィルム 5 1 が得られる。そして、以上説明した手順と同様の手順で、カソード用リード 2 2 の断面の形状及び大きさに適合した形状を有する絞り加工を上記の絞り加工と同時或いは別途行うことにより、該部分がアノード用リード 1 2 及びカソード用のリード 2 2 のそれぞれの断面の形状及び大きさに適合した形状及び大きさを有する第 1 のフィルム 5 1 を得ることができる。カソード用リード 2 2 のための絞り加工をアノード用リード 1 2 のための絞り加工と同時に行う場合には、例えば、金型 9 1 及び金型 9 2 の溝と凹部を増設することにより行うことができる。

【0130】 次に、先に図 2 を参照して説明したように、1 枚のフィルムを折り曲げて、素体 6 0 を配置する。このとき、第 1 のフィルム 5 1 のシール部 5 1 B の絞り加工を施して変形させた部分に素体 6 0 のアノード用リード導体 1 2 及びカソード用リード 2 2 のそれぞれがはめ込まれる。

【0131】 次に、第 1 のフィルム 5 1 及び第 2 のフィルム 5 2 の熱融着させるべき接触部分のうち、第 1 のフィルム 5 1 の熱融着すべき縁部（シール部 5 1 B）と第 2 のフィルム 5 2 の熱融着すべき縁部（シール部 5 2 B）との間に第 1 のリード及び第 2 のリードが配置される部分に対して、以下の手順により熱融着処理を行う（熱融着工程）。

【0132】 次に、上記の熱融着工程について、図 1 5 に基づきアノード用リード導体 1 2 の周囲を第 1 のフィルム 5 1 及び第 2 のフィルム 5 2 に熱融着させる場合を例にして説明する。図 1 5 は、熱融着工程によりアノード用リード導体 1 2 の周囲を第 1 のフィルム 5 1 及び第 2 のフィルム 5 2 に熱融着させる場合の手順を説明するための説明図である。

【0133】 先ず、図 1 5 に示すように、使用するアノード用リード 1 2 の断

面の形状及び大きさに適合した形状及び大きさの溝 9 3 A（凹部）の形成された加熱部材である第 1 の熱融着用の金型 9 3 と、加熱部材である平板状の第 2 の熱融着用の金型 9 4 とを使用し、これらの間に、第 1 のフィルム 5 1 のシール部 5 1 B の熱融着する部分、アノード用リード 1 2、及び、第 2 のフィルム 5 2 のシール部 5 2 B の熱融着する部分からなる積層体を配置する。なお、図 1 5 の場合、溝 9 3 A の形状及び大きさは、アノード用リード 1 2 に熱変形しながら密着させられる第 1 のフィルム 5 1 の厚さ及び断面形状を考慮して、略台形の形状となるように形成されている。

【0 1 3 4】 ここで、図 1 5 に示すように、アノード用リード 1 2 の表面にはケース 5 0 の十分な密封性をより確実に得る観点から、先に述べた接着剤を塗布しておくことが好ましい。これにより、熱融着工程の後において、アノード用リード 1 2 と、第 1 のフィルム 5 1 及び第 2 のフィルム 5 2 との間には、これらの密着性に寄与する接着剤からなる接着剤層 1 4 が形成される。

【0 1 3 5】 また、加熱部材である第 1 の熱融着用の金型 9 3 のみに溝 9 3 A（凹部）を設けずに、加熱部材である第 2 の熱融着用の金型 9 4 にも、第 1 のフィルム 5 1 の厚さ並びに溝 9 1 A の形状及び大きさを考慮した溝を設けてもよい。

【0 1 3 6】 次に、図 1 5 に示すように、第 1 のフィルム 5 1 及び第 2 のフィルム 5 2 の接触部分を押圧した状態で、第 1 の熱融着用の金型 9 3 及び第 2 の熱融着用の金型 9 4 のうちの少なくとも一方の部材を加熱することにより、上記接触部分を熔融させ、第 1 のフィルム 5 1 及び第 2 のフィルム 5 2 を熱融着させる。このとき、第 1 の熱融着用の金型 9 3 及び第 2 の熱融着用の金型 9 4 のうちの少なくとも一方の部材の温度が所定の温度（例えば、1 4 0 ～ 2 0 0℃）となるように加熱する。また、1 4 0 ～ 2 0 0℃の温度条件で更に加圧する場合には、接触部分にかかる圧力が  $9.80 \times 10^4 \sim 49.0 \times 10^4 \text{ Pa}$  であることが好ましい。

【0 1 3 7】 以上説明した手順と同様の手順で、カソード用リード 2 2 の周囲

の部分についても熱融着処理を上記の熱融着処理と同時或いは別途行うことにより、十分な密封性を有するケース50を形成することができる。カソード用リード22の周囲の部分についての熱融着処理をアノード用リード12の周囲の部分についての熱融着処理と同時に行う場合には、例えば、第1の熱融着用の金型93の溝を増設することにより行うことができる。

【0138】 次に、第1のフィルム51のシール部51B（縁部51B）と第2のフィルムのシール部52B（縁部52B）のうち、上述のアノード用リード12の周囲の部分及びカソード用リード22の周囲の部分以外の部分を、例えば、シール機を用いて所定の加熱条件で所望のシール幅だけヒートシール（熱溶着）する。

【0139】 このとき、図16に示すように、電解質溶液30を注入するための開口部H51を確保するために、一部のヒートシールを行わない部分を設けておく。これにより開口部開口部H51を有した状態のケース50が得られる。

【0140】 そして、図16に示すように、開口部H51から電解質溶液30を注入する。続いて、減圧シール機を用いて、ケース50の開口部H51をシールする。更に、図17に示すように、得られる電気化学デバイス1の設置されるべき空間の体積を基準とする体積エネルギー密度を向上させる観点から、必要に応じてケース50シール部を折り曲げる。このようにしてケース50及び電気化学デバイス1（電気二重層キャパシタ）の作製が完了する。

【0141】 以上、本発明の好適な実施形態について詳細に説明したが、本発明は上記実施形態に限定されるものではない。例えば、上記実施形態の説明において、電気化学デバイス1のシール部を折り曲げることにより、よりコンパクトな構成としてもよい。また、上記実施形態の説明においては、アノード10及びカソード20をそれぞれ1つずつ備えた電気化学デバイス1について説明したが、アノード10及びカソード20をそれぞれ1以上備え、アノード10とカソード20との間にセパレータ40が常に1つ配置される構成としてもよい。



【0142】 また、例えば、上記実施形態の説明においては、主として、本発明の製造方法により電気二重層キャパシタを製造する場合について説明したが、本発明の製造方法により製造される電気化学デバイスは電気二重層キャパシタに限定されるものではなく、例えば、本発明の製造方法は、擬似容量キャパシタ、  
5 シュードキャパシタ、レドックスキャパシタ等の電気化学キャパシタの製造にも適用可能である。

【0143】 更に、本発明の製造方法は、互いに対向する第1の電極及び第2の電極と、第1の電極と第2の電極との間に隣接して配置されるセパレータと、電解質溶液とを有し、これらが可とう性を有するフィルムから形成されたケース内に収容される構成のリチウムイオン2次電池等の2次電池の製造にも適用可能である。  
10 ある。

【0144】 以下、実施例及び比較例を挙げて本発明の電気化学デバイスの内容をさらに詳しく説明するが、本発明はこれらの実施例に何ら限定されるものではない。

15 【0145】 (実施例1)

【0146】 以下の手順により、図1に示した電気化学デバイスと同様の構成を有する電気化学デバイス（電気二重層キャパシタ）を作製した。

【0147】 (1) 電極の作製

20 【0148】 アノード（分極性電極）及びカソード（分極性電極）は以下の手順により作製した。まず、賦活処理を施した活性炭素材料と、バインダー（フッ素ゴム）と、導電助剤（アセチレンブラック）とを、これらの質量比が炭素材料：バインダー：導電助剤＝80：10：10となるように配合し、これを溶媒であるMIBK（メチルイソブチルケトン）中に投入して混練することにより、電極形成用の塗布液（以下、「塗布液L1」という）を調製した。

25 【0149】 次に、この塗布液L1をアルミニウム箔からなる集電体（厚さ：50 $\mu$ m）の一方の面上（ここでは、アノード、セパレータ及びカソードをそれ

5 ぞれ複数用いて素体を形成しているため、素体の内部に配置される電極の集電体についてはその両面上) に均一に塗布した。その後、乾燥処理により、塗膜から MIBK を除去し、更に圧延ロールを用いて集電体と乾燥後の塗膜とからなる積層体をプレスし、アルミニウム箔からなる集電体 (厚さ: 50  $\mu\text{m}$ ) の一方の面上に電子伝導性の多孔体層 (厚さ: 37  $\mu\text{m}$ ) が形成された電極 (以下、「電極 E 1」という) を作製した。次に、この電極 E 1 を矩形 (大きさ: 120.0 mm  $\times$  100.0 mm) 状を呈するように切断し、更に、150 $^{\circ}\text{C}$ ~175 $^{\circ}\text{C}$  の温度で真空乾燥を12時間以上行うことにより、電子伝導性の多孔体層の表面に吸着した水分を除去し、打ち抜き加工を行って大きさを調節した実施例1の電気化学デバイスに搭載するアノード及びカソードを作製した。

10 【0150】 なお、塗布液 L1 をアルミニウム箔に塗布する際に、アルミニウム箔の縁部には塗布液 L1 が塗布されないように調節することにより、図13C に示したリード (幅: 10 mm、長さ: 8 mm、厚さ: 50  $\mu\text{m}$ ) が予め一体的に形成されたアノード及びカソードを得た。

15 【0151】 (2) 電気化学デバイスの作製

【0152】 先ず、アノード及びカソードを互いに対向させ、その間に再生セルローズ不織布からなるセパレータ (120.5 mm  $\times$  100.5 mm、厚さ: 0.05 mm) を配置し、アノード、セパレータ及びカソードがこの順で順次積層された積層体 (素体) を形成した。この積層体のアノード及びカソードのそれぞれにリー (幅: 10 mm、長さ: 25 mm、厚さ: 0.50 mm) を超音波溶接により接続した。

20 【0153】 次に、可とう性を有する複合包装フィルムとして、電解質溶液に接触する合成樹脂製の最内部の層 (変性ポリプロピレンからなる層、厚さ: 40  $\mu\text{m}$ )、アルミニウム箔からなる金属層 (厚さ: 40  $\mu\text{m}$ )、ポリアミドからなる層 (厚さ: 20  $\mu\text{m}$ ) がこの順で順次積層された積層体 (厚さ: 20  $\mu\text{m}$ 、大きさ: 130.0 mm  $\times$  110.0 mm) を準備した。

【0154】 次に、先に図14A～図14Cに基づいて説明した手順と同様の手順により、2枚のうちの一方の複合包装フィルムの縁部のうち、アノード用リード及びカソード用リードが配置される部分の絞り加工を行った。なお、金型91の溝91Aの断面形状は図14Aに示したものと同様の台形（上底：10.3 mm，下底：10.5 mm，高さ（厚さ）：0.50 mm）とした。また、絞り加工は、温度条件を室温（約23℃）、及び、複合包装フィルムの縁部にかける圧力を $49.0 \times 10^4 \sim 98.1 \times 10^4 \text{ Pa}$ として行った。

【0155】 次に、2枚の複合包装フィルムを折り曲げて、素体60を配置する。このとき、複合包装フィルムの絞り加工を施して変形させた部分に素体60のアノード用リード導体12及びカソード用リード22のそれぞれをはめ込んだ。

【0156】 その際に、アノード用リード及びカソード用リードの周囲のそれぞれに、先に述べた接着剤層14及び24として、酸変性ポリプロピレンフィルム（厚さ：100  $\mu\text{m}$ ）を被覆した。

【0157】 次に、先に図15に基づいて説明した手順と同様の手順により、アノード用リード及びカソード用リードの周囲に熱融着処理を施した。なお、第1の熱融着用の金型93の溝93Aの断面形状は図15に示したものと同様の台形（上底：10.3 mm，下底：10.5 mm，高さ（厚さ）：0.50 mm）とした。また、熱融着処理の条件は、複合包装フィルムの縁部にかける圧力を $49.0 \times 10^4 \text{ Pa}$ とし、185℃で10秒間行った。

【0158】 次に、2枚の複合包装フィルムのシール部のうち、上述のアノード用リード12の周囲の部分及びカソード用リード22の周囲の部分以外の部分を、シール機を用いてシール幅を4 mmとしてヒートシール（熱溶着）した。このとき、図16に示したように、電解質溶液30を注入するための開口部を確保するために、一部のヒートシールを行わない部分を設けた。

【0159】 次に、上記開口部から、ケース内へ電解質溶液（1.0 mol/Lのトリエチルメチルアンモニウム四フッ化ホウ素塩のプロピレンカーボネート

溶液)を注入した。続いて、減圧シール機を用いて、ケース50の開口部H51をシールした。このようにして電気化学デバイスを作製した。

【0160】 (実施例2)

【0161】 実施例1に使用したリードのかわりに、厚さの異なるリード(幅: 10mm、長さ: 25mm、厚さ: 3.00mm)を使用した。更に、これに伴い絞り加工に使用した金型91の溝91Aの断面形状を台形(上底: 10.3mm, 下底: 10.5mm, 高さ(厚さ): 3.00mm)とし、更に、熱融着処理に使用した第1の熱融着用の金型93の溝93Aの断面形状を台形(上底: 10.3mm, 下底: 10.5mm, 高さ(厚さ): 3.00mm)としたこと以外は、実施例1の電気化学デバイスと同様の手順及び条件により電気化学デバイスを作製した。

【0162】 (実施例3)

【0163】 実施例1に使用したリードのかわりに、厚さの異なるリード(幅: 10mm、長さ: 25mm、厚さ: 0.10mm)を使用した。更に、これに伴い絞り加工に使用した金型91の溝91Aの断面形状を台形(上底: 10.3mm, 下底: 10.5mm, 高さ(厚さ): 0.10mm)とし、更に、熱融着処理に使用した第1の熱融着用の金型93の溝93Aの断面形状を台形(上底: 10.3mm, 下底: 10.5mm, 高さ(厚さ): 0.10mm)としたこと以外は、実施例1の電気化学デバイスと同様の手順及び条件により電気化学デバイスを作製した。

【0164】 (実施例4)

【0165】 実施例1において行った絞り加工を行わなかったこと以外は、実施例1の電気化学デバイスと同様の手順及び条件により電気化学デバイスを作製した。

【0166】 (比較例1)

【0167】 実施例1において行った絞り加工を行わず、更に、熱融着処理に

において、溝を形成していない平板状の第1の熱融着用加熱部材及び平板状の第2の熱融着用加熱部材を用いたこと以外は、実施例1の電気化学デバイスと同様の手順及び条件により電気化学デバイスを作製した。

【0168】 (比較例2)

5 【0169】 実施例1に使用したリードのかわりに、厚さの異なるリード(幅: 10mm、長さ: 25mm、厚さ: 4.00mm)を使用した。更に、実施例1において行った絞り加工を行わず、熱融着処理に使用した第1の熱融着用の金型93の溝93Aの断面形状を台形(上底: 10.3mm, 下底: 10.5mm, 高さ(厚さ): 3.00mm)としたこと以外は、実施例1の電気化学デバイスと  
10 同様の手順及び条件により電気化学デバイスを作製した。

【0170】 (比較例3)

【0171】 実施例1に使用したリードのかわりに、厚さの異なるリード(幅: 10mm、長さ: 25mm、厚さ: 3.00mm)を使用した。更に、実施例1  
15 において行った絞り加工を行わず、熱融着処理において、溝を形成していない平板状の第1の熱融着用加熱部材及び平板状の第2の熱融着用加熱部材を用いたこと  
と以外は、実施例1の電気化学デバイスと同様の手順及び条件により電気化学デ  
バイスを作製した。

【0172】 [電気化学デバイスの特性評価試験]

【0173】 実施例1～実施例4並びに比較例1～比較例3の各電気化学デバ  
20 イス(電気二重層キャパシタ)について以下の諸特性を測定した。

【0174】 先ず、充放電試験装置を使用し、0.5Cの定電流充電を行い、  
電気二重層キャパシタに電荷が蓄積していくに従って電圧が上昇するのをモニタ  
し、電位が2.5Vに達したのち、定電圧充電(緩和充電)に移行し、電流が充  
電電流の1/10になった時に充電を終了させた。なお、このときのトータルの  
25 充電時間(つまり、充電時間+緩和充電時間)は、セルの静電容量に依存する。  
そして、放電も0.5Cの定電流放電を行い終止電圧を0Vとした。この試験後、

1 Cの電流で充電を行い、電位が2.5 Vに達した後、定電圧充電に移行し、電流が充電電流の1/10になったときに充電を終了させた。そして、放電も1 Cの定電流放電を行い終止電圧を0 Vとした。再び充電を開始させ、これを10回繰り返した。

5 【0175】 電気化学デバイスの容量（電気化学デバイスのセルの静電容量）は次のようにして求めた。すなわち、放電曲線（放電電圧－放電時間）から放電エネルギー（放電電圧×電流の時間積分として合計放電エネルギー  $[W \cdot s]$ ）を求め、キャパシタ容量  $[F] = 2 \times \text{合計放電エネルギー } [W \cdot s] / (\text{放電開始電圧 } [V])^2$  の関係式を用いて評価セルの容量（キャパシタ容量） $[F]$  を求めた。

10 【0176】 次に、測定環境温度25℃、相対湿度60%において、各電気化学デバイスの容量及び内部抵抗を測定した（以下、「評価試験1」という）。内部抵抗の測定は、以下の手順で行った。すなわち、1 KHzの周波数で10 mAを流したときの電圧の変化量より、内部抵抗を算出した。

15 【0177】 次に、測定環境温度70℃、相対湿度90%とした環境に各電気化学デバイスを168時間放置した後、再び、測定環境温度25℃、相対湿度60%の元での容量及び内部抵抗を先に述べた評価試験1の手順及び条件と同様の手順及び条件で測定した（以下、「評価試験2」という）。また、測定環境温度70℃、相対湿度90%とした環境のもとで168時間放置した後の各電気化学デバイスの外観についても目視により評価した。

20 【0178】 実施例1～実施例4並びに比較例1～比較例3の各電気化学デバイスの特性評価試験の結果を表1に示す。

【表1】

	評価試験 1		評価試験 2		
	内部抵抗 / $m\Omega$	キャパシタ容量 /F	内部抵抗 / $m\Omega$	キャパシタ容量 /F	目視による外観評価
実施例 1	1. 1	1001	1. 2	1000	異常なし
実施例 2	1. 1	1000	1. 0	998	異常なし
実施例 3	1. 0	999	1. 0	998	異常なし
実施例 4	1. 2	1000	1. 1	999	異常なし
比較例 1	1. 1	998	測定不能	測定不能	異常発生
比較例 2	1. 3	990	2500. 0	測定不能	異常発生
比較例 3	測定不能	測定不能	測定不能	測定不能	異常発生

【0179】 表1に示した結果から明らかなように、実施例1～実施例4の各電気化学デバイスは、各比較例に比し優れた信頼性を有していることが確認された。

【0180】 また、測定環境温度70℃、相対湿度90%とした環境のもとで168時間放置した後の各電気化学デバイスの外観について目視により評価したところ、比較例1～3の各電気化学デバイスには異常が発生していることが確認された。

5 【0181】 これについて詳しく説明すると、比較例1の電気化学デバイスでは、リードの周囲に微細な孔が存在し、この孔を介してケース中に水分が混入し、この水分と電解質溶液が反応して酸が発生して、リードが腐食して欠落したことが確認された。また、比較例2の電気化学デバイスは、測定環境温度70℃、相対湿度90%とした環境のもとに放置した後、内部抵抗が2000倍以上増加し、  
10 容量が測定不能となるなど特性が大幅に低下した。また、測定環境温度70℃、相対湿度90%とした環境のもとに放置した後において、リードの腐食が確認された。更に、比較例3の電気化学デバイスは、測定環境温度70℃、相対湿度90%とした環境とする以前に、電気化学デバイスを作製した直後において既に電解質溶液がケース外部に漏洩していることが確認され、全ての特性評価試験を行うことができなかった。  
15

【0182】 これに対して実施例1～実施例4の各電気化学デバイスには異常が見られず、密封性を有していることが確認された。

#### 産業上の利用可能性

【0183】 以上説明したように、本発明の製造方法によれば、厚さが0.05mm以上であり、かつ、断面積が $5 \times 10^{-4} \text{ cm}^2$ 以上のリードを使用する場合  
20 であっても密封性に優れたケースを容易かつ確実に形成することができ、液漏れの発生を十分に防止できる優れた信頼性を有する電気化学デバイスを提供することができる。しかも、本発明の製造方法によれば、小型化及び軽量化が容易な構成を有する電気化学デバイスを容易に提供することができる。特に、本発明の製造方法によれば、大電流充放電が可能な電気化学デバイス（例えば、10～20  
25 0Aでの充放電が可能な電気化学デバイス）を提供することができる。



## 請求の範囲

1. 互いに対向する第1の電極及び第2の電極を有する電気化学デバイス素体と、

互いに対向する第1のフィルム及び第2のフィルムにより形成されており、前記電気化学デバイス素体を密閉した状態で収容するケースと、

前記第1の電極に一方の端部が接続されると共に他方の端部が前記ケースの外部に突出される第1のリードと、

前記第2の電極に一方の端部が接続されると共に他方の端部が前記ケースの外部に突出される第2のリードと、

を有する電気化学デバイスの製造方法であって、

互いに対向する1対の加熱部材の間に、前記第1のフィルム及び前記第2のフィルムのそれぞれの縁部同士を接触させた状態で配置し、前記縁部同士の接触部分を押圧した状態で、前記1対の加熱部材のうちの少なくとも一方を加熱することにより、前記第1のフィルムと第2のフィルムとを熱融着させる熱融着工程を有しており、

前記1対の加熱部材のうちの少なくとも一方には、前記第1のフィルム及び前記第2のフィルムの前記縁部間の前記第1のリード及び前記第2のリードが配置される部分に、前記第1のリード及び前記第2のリードのそれぞれの断面の形状に応じた形状の溝が形成されていること、

を特徴とする電気化学デバイスの製造方法。

2. 前記第1のリード及び前記第2のリードとして、厚さが0.05～3.00mmである金属製のリードを使用すること、を特徴とする請求項1に記載の電気化学デバイスの製造方法。

3. 前記第1のフィルム及び前記第2のフィルムの少なくとも一方における熱融着すべき縁部のうちの前記第1のリード及び前記第2のリードに接触する部分に対し、該部分が前記第1のリード及び前記第2のリードのそれぞれの断面の

形状及び大きさに応じた形状及び大きさとなるように予め絞り加工を施して変形させておき、

次いで、前記熱融着工程を行うこと、

を特徴とする請求項 1 に記載の電気化学デバイスの製造方法。

5        4.    前記第 1 のリード及び前記第 2 のリードとして、厚さが 0.10 mm 以上である金属製のリードを使用すること、を特徴とする請求項 3 に記載の電気化学デバイスの製造方法。

10       5.    前記第 1 のリード及び前記第 2 のリードとして、断面積が  $5.0 \times 10^{-4} \sim 1.0 \text{ cm}^2$  である金属製のリードを使用すること、を特徴とする請求項 1 ～ 4 のうちの何れか 1 項に記載の電気化学デバイスの製造方法。

6.    前記第 1 の電極及び前記第 2 の電極として、平板状の形状を呈しており、電子伝導性の多孔体を構成材料として含む電極を使用し、

前記セパレータとして、平板状の形状を呈しており、絶縁性の多孔体からなる部材を使用し、かつ、

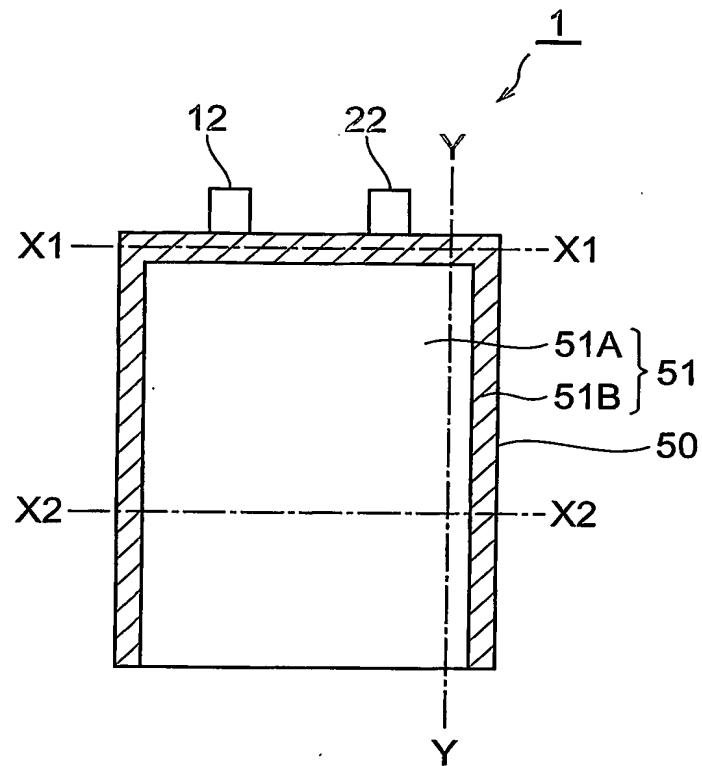
15       前記電解質溶液を、少なくともその一部が前記第 1 の電極及び前記第 2 の電極、及びセパレータの内部に含有させるように前記ケース中に充填すること、を特徴とする請求項 1 ～ 5 のうちの何れか 1 項に記載の電気化学デバイスの製造方法。

20       7.    前記第 1 のフィルム及び前記第 2 のフィルムとして、前記電解質溶液に接触する合成樹脂製の最内部の層と、前記最内部の層の上方に配置される金属層とを少なくとも有する複合包装フィルムを使用すること、を特徴とする請求項 1 ～ 6 のうちの何れか 1 項に記載の電気化学デバイスの製造方法。

25       8.    前記第 1 のフィルムの熱融着すべき縁部及び前記第 2 のフィルムの熱融着すべき縁部に接触する前記第 1 のリードの表面部分に合成樹脂製の接着剤を予め塗布するとともに、前記第 1 のフィルムの熱融着すべき縁部及び前記第 2 のフィルムの熱融着すべき縁部に接触する前記第 2 のリードの表面部分に合成樹脂製

の接着剤を予め塗布し、次いで、前記熱融着工程を行うこと、を特徴とする請求項 1 ～ 7 のうちの何れか 1 項に記載の電気化学デバイスの製造方法。

- 5 9. 合成樹脂製の接着剤として、変性ポリプロピレン、変性ポリエチレン及びエポキシ樹脂からなる群より選択される少なくとも 1 種の樹脂を構成材料として含む接着剤を使用すること、を特徴とする請求項 8 に記載の電気化学デバイスの製造方法。



 2

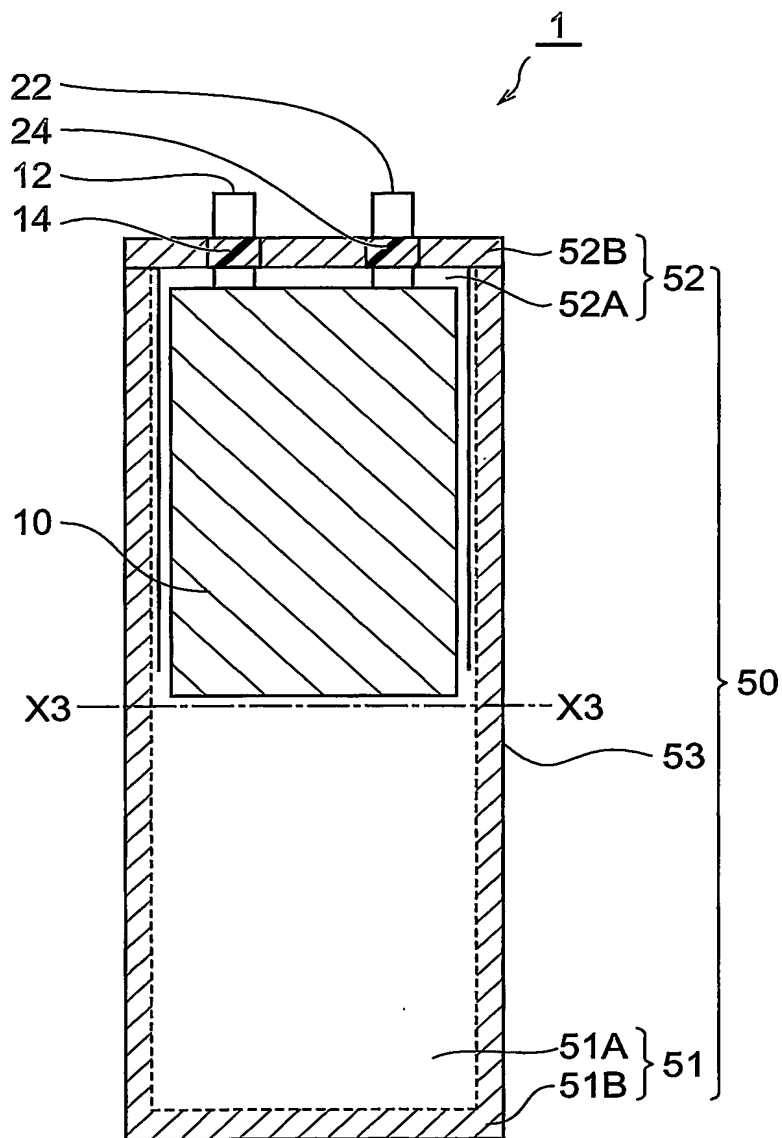


図3

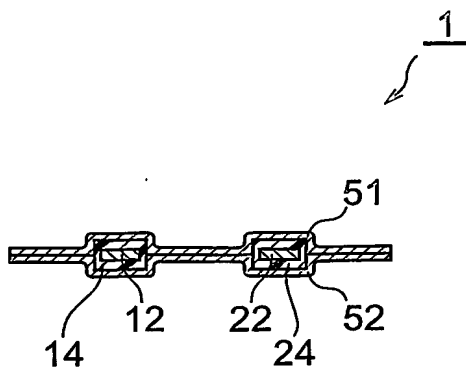


図4

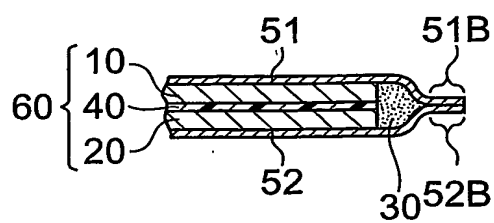


図5

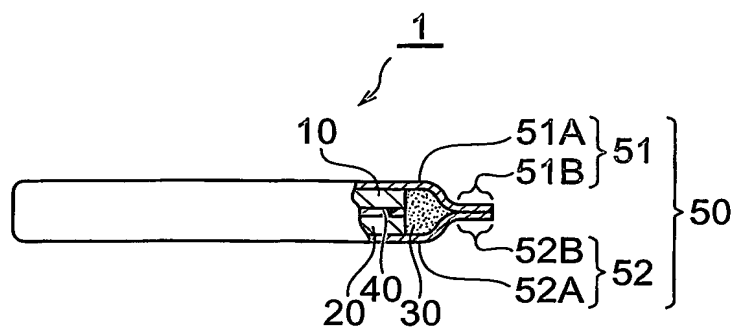


図6

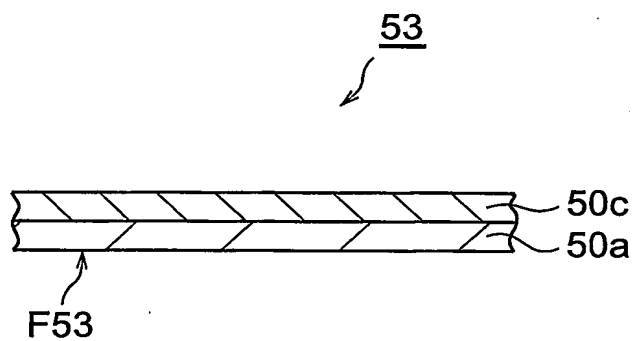


図7

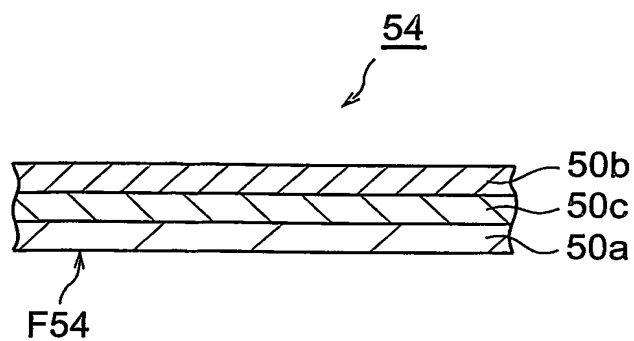
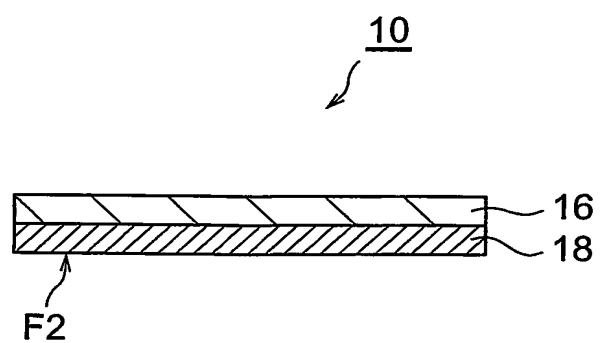
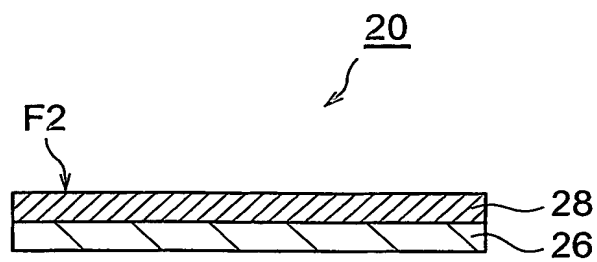


図8





 9



10

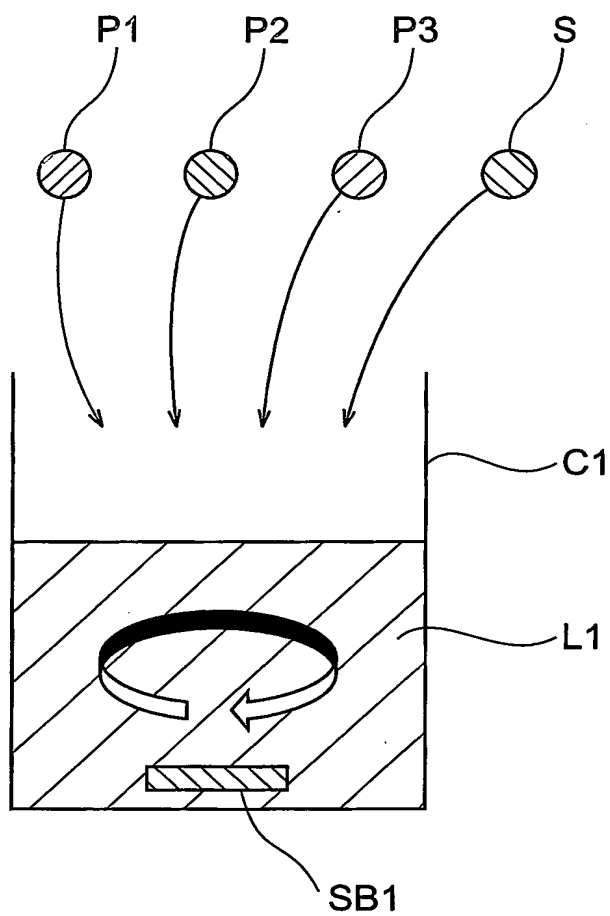




图12

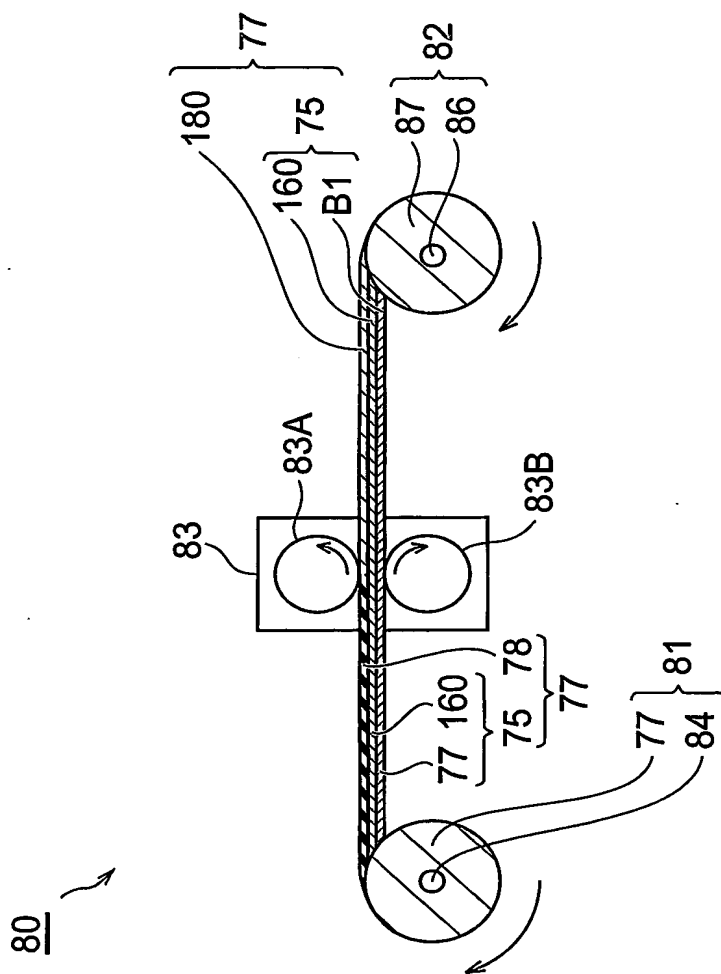


図 13A

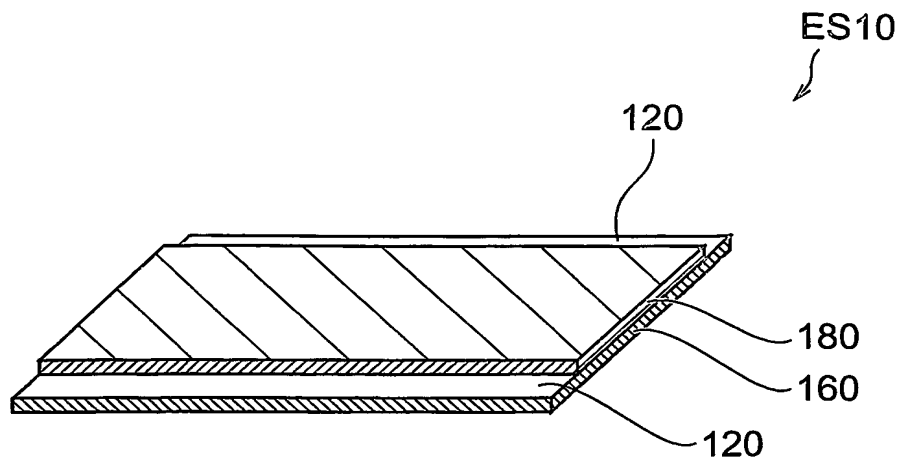


図 13B

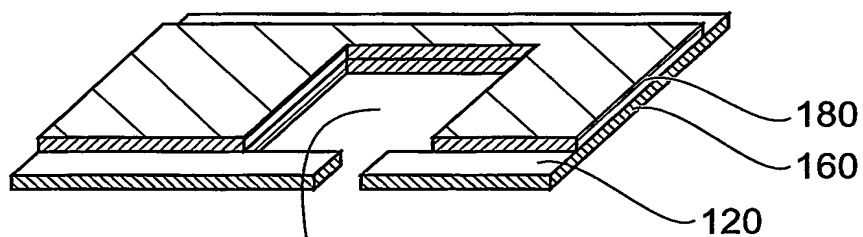


図 13C

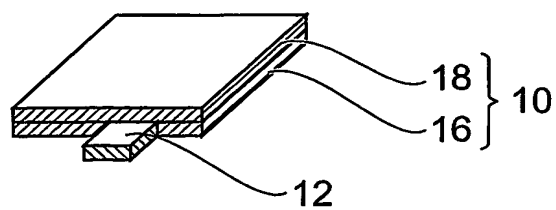


図14A

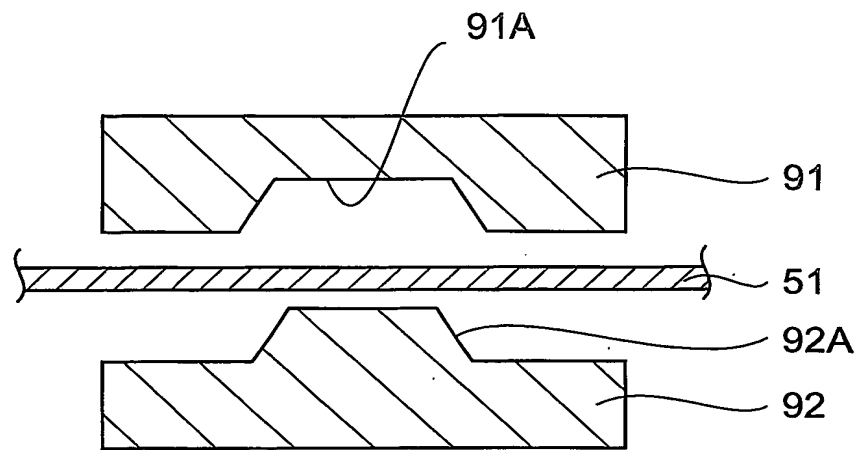


図14B

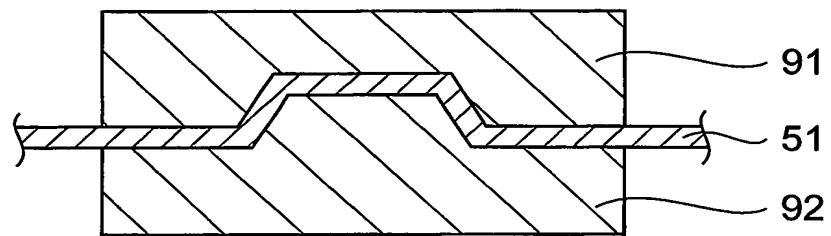
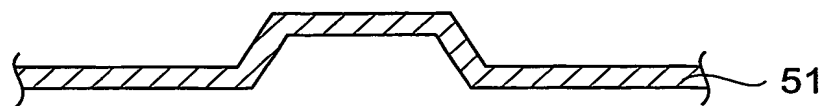

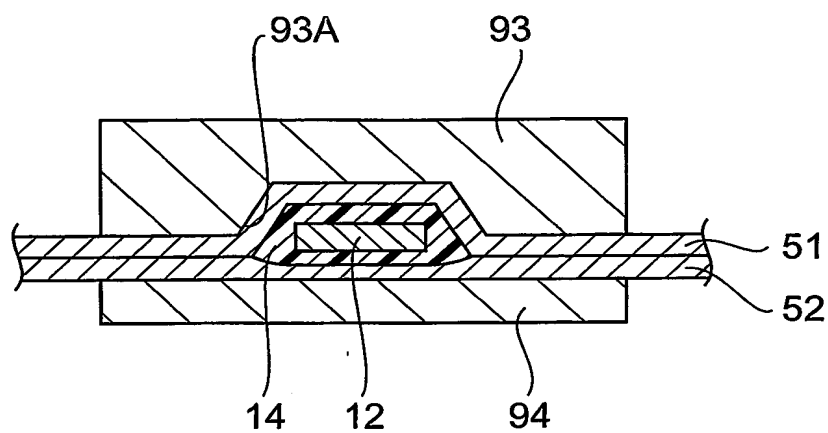


図14C



 15



16

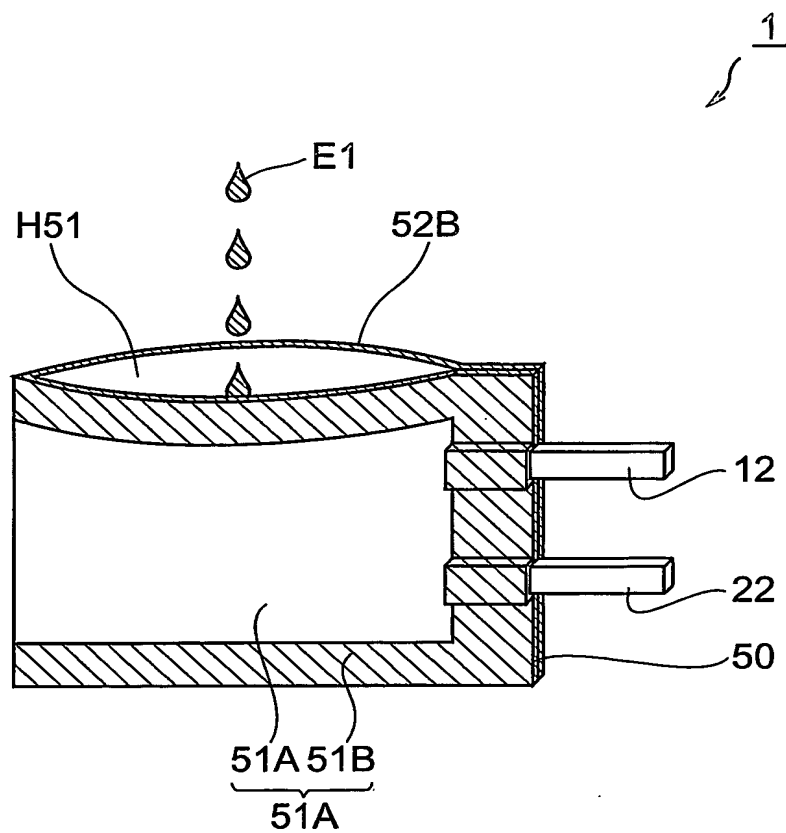




図17

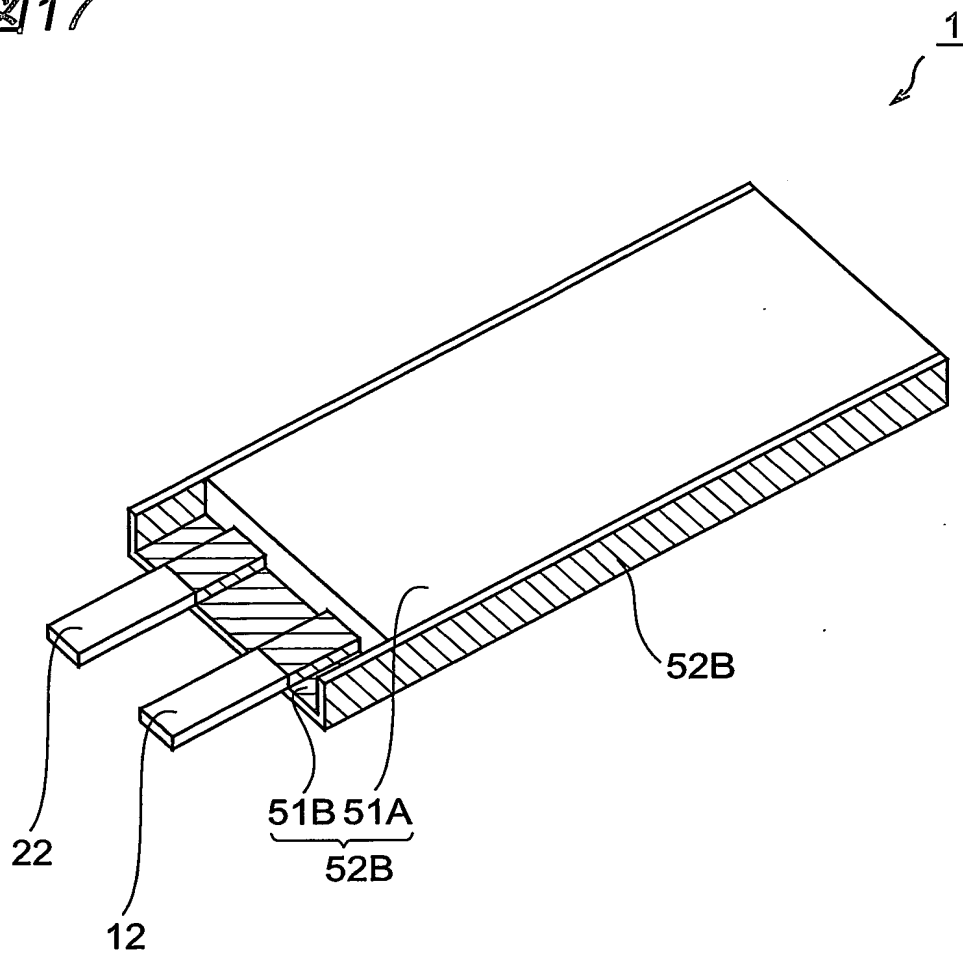


図18A

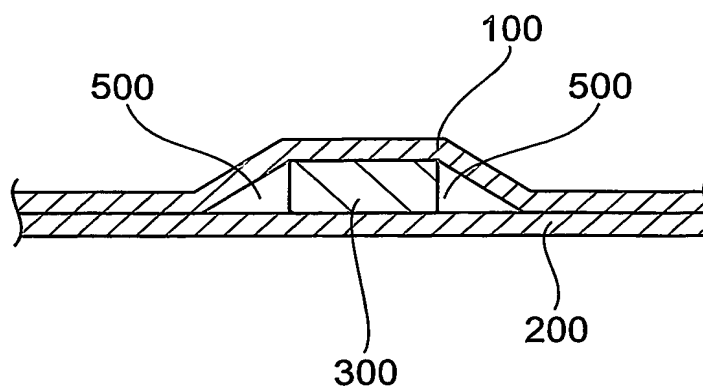
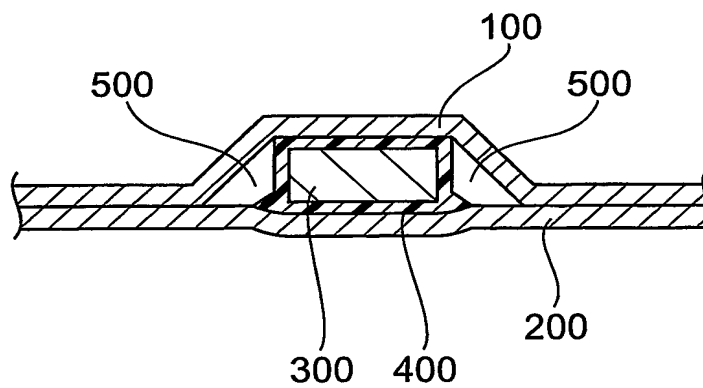


図18B



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/004440

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> H01G13/00, 9/155, 9/10, H01M2/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> H01G13/00, 9/155, 9/10, H01M2/06

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2004	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2004

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2001-229890 A (Dainippon Printing Co., Ltd.), 24 August, 2001 (24.08.01), Claims; Par. Nos. [0006], [0031]; Figs. 1 to 10 & WO 01/054985 A1 & CA 2368006 A & EP 1180480 A1	1-9
Y	JP 2001-297738 A (Yuasa Corp.), 26 October, 2001 (26.10.01), Full text; all drawings (Family: none)	1-9
Y	JP 61-198550 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 02 September, 1986 (02.09.86), Full text; all drawings (Family: none)	3

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
08 July, 2004 (08.07.04)

Date of mailing of the international search report  
27 July, 2004 (27.07.04)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01G 13/00, 9/155, 9/10, H01M 2/06

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01G 13/00, 9/155, 9/10, H01M 2/06

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1922-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2004年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2004年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2004年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 2001-229890 A (大日本印刷株式会社) 2001.08.24, 特許請求の範囲, [0006]欄, [0031]欄, 第1-10図 &WO 01/054985 A1 & CA 2368006 A &EP 1180480 A1	1-9
Y	JP 2001-297738 A (株式会社ユアサコーポレーション) 2001.10.26, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-9
Y	JP 61-198550 A (松下電器産業株式会社) 1986.09.02, 全文, 全図 (ファミリーなし)	3

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

08.07.2004

国際調査報告の発送日

27.7.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

桑原 清

5R

9375

電話番号 03-3581-1101 内線 3565